

THÈSES

présentées à la
FACULTE DES SCIENCES
D'ORSAY

Pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

par

R. KLAPISCH

1ère THESE : Nouvelle méthode d'étude des produits de réactions
nucléaires par spectrométrie de masse. Application
aux réactions de fragmentation à haute énergie.

2ème THESE : Propositions données par la Faculté.

Soutenue le 8 Juin 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. GUINIER

Président

TEILLAC
BERNAS

}

Examineurs

Paris



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41549020_0016

THÈSES

présentées à la

FACULTE DES SCIENCES

D'ORSAY

Pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

par

R. KLAPISCH

1ère THESE : Nouvelle méthode d'étude des produits de réactions nucléaires par spectrométrie de masse. Application aux réactions de fragmentation à haute énergie.

2ème THESE : Propositions données par la Faculté.

Soutenue le 8 Juin 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. GUINIER

Président

TEILLAC

BERNAS

}

Examineurs



TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : Revue des différentes techniques utilisées pour étudier les réactions de fragmentation : caractéristiques - bilan de leur apport	3
I - Emulsion ionographique	3
II - Techniques radiochimiques	6
III - Nouvelles techniques d'étude	10
IV - Conclusion	12
CHAPITRE II : Méthode expérimentale : généralités	15
I - Difficultés du problème	15
II - Sensibilité du spectromètre de masse aux très faibles quantités de matière	16
a) production des ions	
b) détection des ions	
III - Femtochimie : procédés mis en œuvre pour traiter des échantillons de l'ordre de 10^{-15} g	23
CHAPITRE III : Analyse différée : méthode des filaments	
I - Principe et conditions générales d'application ...	29
II - Mise en œuvre effective	31
Description du spectromètre de masse	
Préparation des cibles	
Analyse isotopique	
Application à la mesure des coefficients de diffusion	33

III - Résultats expérimentaux	35
cibles de Rh, Ta et Pt	
IV - Conclusion sur la méthode	40
sensibilité	
domaine d'application	

CHAPITRE IV : Analyse directe par spectrométrie de masse en ligne

I - Généralités et description de principe	43
II - Réalisation effective	44
description du spectromètre	
cibles	
disposition dans le faisceau	
rapport signal sur bruit	
balayage à accumulation : emploi d'un sélecteur multi-échelle	
mesure du temps de diffusion	
III - Résultats obtenus	51
IV - Applications possibles à la caractérisation d'iso- topes nouveaux	54
recherche de ^8He	
recherche d'autres isotopes	
application à la production en continu d'isotopes à vie courte pour la spectroscopie nucléaire	

CHAPITRE V : Discussion des résultats expérimentaux et des tentatives de traitement quantitatif

I - Calculs statistiques appliqués à ^{12}C	59
II - Comparaison entre les modèles statistiques de FERMI et de WEISSKOPF	62

III - Discussion des données expérimentales sur les sections efficaces	67
Influence de la taille des fragments : courbe de distribution de masse	
Dispersion des charges : influence de la riches- se en neutrons des fragments	
Variation avec la nature de la cible	
Valeur absolue des sections efficaces de fragmentation	
IV - Discussion des tentatives d'interprétation et de traitement quantitatif	73
Les différents modèles proposés pour expliquer la fragmentation	
Calculs d'évaporation appliqués à la fragmenta- tion : discussion du principe et comparai- son avec l'expérience	
CONCLUSION	80
REMERCIEMENTS	82
ANNEXE I : Résultats expérimentaux obtenus à 150 MeV ..	84
ANNEXE II : Diffusion dans les solides - considérations générales - résultats expérimentaux	85
ANNEXE III : Résultats expérimentaux concernant la produc- tion d'isotopes du Li à partir de ^{11}B	94

ANNEXE IV : Utilisation comparée d'un séparateur d'isotopes et d'un spectromètre de masse à émission thermique pour la séparation en continu de nuclides de courtes périodes	95
BIBLIOGRAPHIE	98

INTRODUCTION

On divise habituellement en trois catégories les réactions nucléaires à grande énergie. Les réactions de spallation, qui conduisent à des noyaux dont la masse est plus ou moins voisine de la masse du noyau-cible, sont expliquées de façon satisfaisante par les modèles de réaction en deux étapes.

Les réactions de fission à grande énergie donnent généralement naissance à deux fragments de masse approximativement égale à la moitié de la masse de la cible ; le mécanisme en est certes moins bien compris mais, comme on l'a fait remarquer⁽¹⁾, ceci ne doit pas surprendre puisque, même à basse énergie, la fission n'est pas expliquée actuellement de façon pleinement satisfaisante.

Comment classer la troisième catégorie ? Lorsque des fragments tels que ${}^8\text{Li}$ ou ${}^{24}\text{Na}$ sont produits à partir de noyaux lourds, tels que Ag ou Bi, on hésite à parler de spallation ou de fission. Aussi, pour expliquer les caractéristiques déconcertantes de ces phénomènes, certains auteurs⁽²⁾ ont émis l'hypothèse qu'il pourrait s'agir d'une nouvelle catégorie de réactions nucléaires et ont proposé un nom : la fragmentation.

S'agit-il vraiment d'un comportement nouveau des noyaux très excités ? Peut-on, au contraire, expliquer les faits expérimentaux dans le cadre des modèles actuellement admis ?

Cette question a été posée il y a une dizaine d'années déjà sans que l'on puisse considérer que des progrès décisifs aient été faits. Il peut sembler, dans ces conditions, qu'une réponse ne puisse provenir éventuellement que d'un approfondissement de nos connaissances expérimentales, impliquant peut-être un certain renouvellement des méthodes d'approche.

C'est sur ce point que nous avons fait porter notre effort.
Avant d'exposer notre contribution, nous voudrions passer brièvement en revue l'"arsenal" de moyens expérimentaux dont on dispose jusqu'ici.

On trouvera donc dans le chapitre suivant une discussion des principales caractéristiques des techniques employées et un bilan des résultats qu'elles ont permis d'obtenir. Un bref résumé des principales caractéristiques de la fragmentation sera présenté à cette occasion^(°).

(°) Il ne s'agira pas cependant d'une revue exhaustive des travaux sur la fragmentation, telle que celle de PERFILOV⁽³⁾ ou LEFORT⁽⁴⁾, auxquels on pourra se référer.

CHAPITRE I

REVUE DES DIFFERENTES TECHNIQUES UTILISEES POUR ETUDIER LES REACTIONS DE FRAGMENTATION : CARACTERISTIQUES - BILAN DE LEUR APPORT.

I - EMULSION IONOGRAPHIQUE

C'est en exposant des émulsions ionographiques aux rayons cosmiques d'abord, au rayonnement des accélérateurs ensuite, que l'on découvrit que des fragments plus lourds que des nucléons : α , noyaux légers, étaient émis dans les "étoiles de désintégration" des noyaux de l'émulsion. Depuis, de très nombreuses études ont employé cette technique.

Il s'agit d'une méthode visuelle qui est donc idéale pour découvrir et étudier les événements rares "signés" : découverte de la fragmentation et de l'hyperfragmentation. Elle permet de voir non seulement le fragment, mais toutes les autres particules chargées émises au cours de la même désintégration (on peut notamment estimer ainsi l'énergie d'excitation du noyau cible). La contrepartie de ces avantages est le nombre nécessairement restreint des événements dépouillés. On se heurte donc assez vite à l'insuffisance des statistiques.

Les noyaux-cibles sont généralement limités aux noyaux de l'émulsion. Encore n'arrive-t-on à séparer que deux groupes (CNO) et (Ag Br) essentiellement par le nombre de branches des étoiles. On a tenté d'échapper à cette limitation soit en employant des émulsions "chargées" -méthode assez délicate- soit à l'aide de cibles extérieures. Ce dernier cas donne des résultats intéressants⁽⁵⁾ mais finalement l'émulsion ne joue ici qu'un rôle de détecteur : on n'observe plus l'étoile-mère et on perd ainsi une partie des avantages de la méthode.

Les seuls fragments identifiables de façon aisée sont ceux de ^8Li qui donnent des "traces-marteaux" : on observe dans l'émulsion le parcours du ^8Li , puis après décroissance β , les deux α à 180° dus au ^8Be . On peut également repérer ^8Be (2 α en corrélation) et ^8B (comme ^8Li).

Pour les autres fragments, l'identification est beaucoup plus délicate et les auteurs se contentent en général d'estimer le Z. En ce sens, l'étude la plus précise a été faite récemment par R. STEIN⁽⁶⁾, qui a mesuré les largeurs de traces à l'aide d'un photomètre spécial. On peut ainsi discriminer les charges jusqu'à $Z = 8$. On ne peut, par contre, identifier les isotopes (sauf pour la masse 8).

Connaissant une relation énergie-parcours, on peut déduire l'énergie des fragments. Comme on ne connaît généralement pas la masse de la particule, il en résulte une imprécision dans la détermination de l'énergie qui peut atteindre 8 % par exemple entre ^6Li et ^7Li .

Les mesures d'angle entre la direction du fragment et celle de la particule incidente peuvent être effectuées avec une bonne précision. De même, la multiplicité d'émission des fragments dans une même étoile peut être étudiée sans difficulté en fonction des autres paramètres.

Quelles sont finalement les caractéristiques des réactions de fragmentation qui ont pu être établies grâce à cette méthode ?

a) Nature des fragments émis

Les auteurs s'accordent à trouver une décroissance exponentielle de la fréquence d'émission avec le Z des fragments. A notre avis, cette dépendance expérimentale, certainement valable pour les fragments de $Z = 3$ à $Z = 8$ provenant d'une cible de (Ag Br), n'est pas forcément générale et pourrait être en défaut pour des fragments provenant de cibles plus lourdes. Nous pensons donc qu'il est impropre de parler de "loi" à ce propos (voir chap. VI).

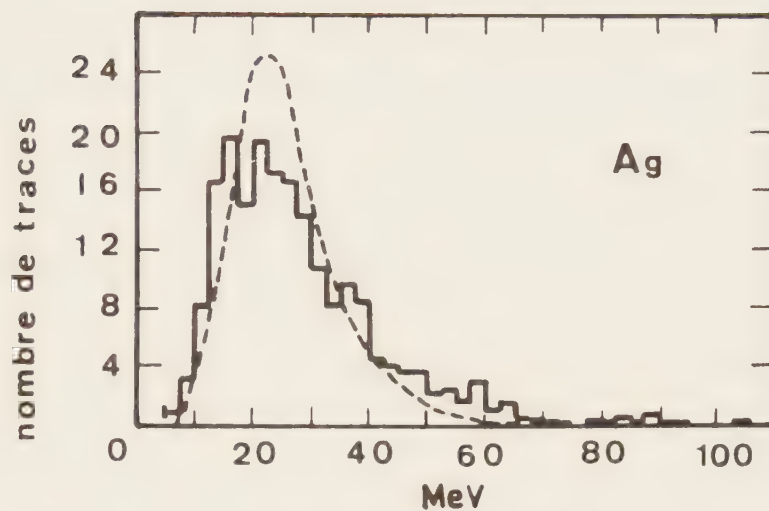


Fig. 1 : Spectre d'énergie des fragments de ^8Li émis dans la réaction $P_2\text{ GeV} + \text{Ag}$ (d'après KATCOFF, BAKER, PORILE⁽⁵²⁾).
On remarquera l'accord approximatif avec un spectre maxwellien.

b) Energie des fragments

De très nombreuses études montrent que le spectre d'énergie des fragments est (au moins qualitativement) un "spectre d'évaporation" maxwellien (fig. 1). L'énergie moyenne des fragments n'augmente pas avec l'énergie des particules incidentes. Par contre, elle croît avec le Z du fragment émis ainsi qu'avec la masse du noyau-cible⁽⁵⁾. Ces deux considérations indiqueraient l'existence d'un effet coulombien.

Si l'on cherche un accord quantitatif avec la théorie de l'évaporation, on est conduit à des valeurs de températures nucléaires très élevées ($T = 15$ MeV) et à des barrières coulombiennes très faibles ($V = 4$ MeV) pour l'émission de ${}^8\text{Li}$ (6).

Bien qu'il subsiste entre les auteurs de nombreuses divergences quant aux valeurs précises des paramètres, à leur interprétation, etc..., il nous semble que les résultats obtenus par la méthode des émulsions constituent dans ce domaine un acquis incontestable.

c) Distributions angulaires

Les études menées ont cherché à préciser le degré d'anisotropie du phénomène par rapport à la direction du proton incident.

On se heurte ici à deux sortes de difficultés :

1°) les statistiques deviennent vite assez pauvres dès que l'on veut étudier le rapport $\frac{\text{Avant}}{\text{Arrière}}$ (F/B) en fonction d'un paramètre déterminé tel que la nature d'un ion ou son énergie.

2°) il n'est pas aisé de passer du système du laboratoire au système du noyau émetteur : il faudrait connaître la vitesse d'entraînement du noyau qui n'est pas accessible directement.

Ces difficultés expliquent peut-être les conclusions contradictoires tirées par certains auteurs. Elles expliquent aussi qu'on ne puisse pas à l'heure actuelle dire de façon nette si le phénomène est isotrope ou

non dans le système du centre de masse.

L'anisotropie réelle⁽⁶⁾ serait en tous cas plus faible ($F/B = 1,4$) que celle qui était annoncée auparavant⁽⁷⁾

d) Multiplicité des fragments

L'observation des étoiles de désintégration a permis de mettre en évidence que, dans certains cas, on peut avoir formation de plus d'un fragment (2, 3 ou même davantage). Cette caractéristique originale qui distingue la production de fragments de la fission comme de la spallation n'a pu être étudiée pour l'instant que dans l'émulsion.

On trouve une nette corrélation entre la multiplicité des fragments et l'énergie d'excitation de l'étoile-mère. Par contre, on ne sait pas encore si les fragments multiples sont émis indépendamment ou en corrélation, les informations sur ce point étant contradictoires⁽⁸⁾.

II - TECHNIQUES RADIOCHIMIQUES

En irradiant une cible donnée, on peut mesurer avec une bonne précision, par les techniques de la radiochimie, la production d'un radioisotope déterminé et tracer ainsi les fonctions d'excitation $\sigma = f(E)$ en faisant varier l'énergie (éventuellement la nature) de la particule incidente

La nécessité d'opérer des séparations chimiques limite, en général, les possibilités du côté des nuclides de courte période. Par contre, si les périodes sont trop longues, il devient difficile d'accumuler suffisamment d'activité pour procéder à la mesure avec une bonne précision. Les isotopes les plus couramment étudiés ont été :

^7Be (53 j) - ^{11}C (20 m) - ^{13}N (10 m) - ^{18}F (2 h) - ^{24}Na (15 h)

^{22}Na (2,2 ans) - ^{28}Mg (21 h).

Exceptionnellement, on a pu étudier ${}^6\text{He}$ (0, 84 s). De même l'émission de "neutrons différés" est suffisamment caractéristique pour que l'on puisse ainsi identifier certains nuclides tels que : ${}^9\text{Li}$ (0, 17 s) - ${}^{17}\text{N}$ (4, 16 s) - etc. . . .

Il faut évidemment connaître le schéma de désintégration de l'isotope auquel on s'intéresse. La mesure précise des flux de protons étant fort délicate, on procède, en général, par comparaison avec le résultat d'une réaction-moniteur que l'on a étudiée avec soin⁽⁹⁾. Compte tenu de ces difficultés, la précision absolue annoncée par les auteurs est de l'ordre de 20 %. La précision relative de deux séries de mesures faites dans les mêmes conditions peut être meilleure.

Les méthodes de collection des noyaux de recul permettent aux radiochimistes de mesurer les parcours (donc les énergies) des fragments ainsi que leur distribution angulaire.

Dans la méthode de la cible épaisse (SUGARMAN⁽¹⁰⁾), une cible d'épaisseur W est placée entre deux feuilles collectrices de matière plastique dont l'épaisseur est suffisante pour arrêter tous les fragments.

On effectue deux irradiations, l'empilement étant perpendiculaire puis parallèle au faisceau de protons et on mesure, à chaque fois, l'activité restant dans la cible et projetée respectivement vers l'avant et vers l'arrière. Ces données permettent, en appliquant une méthode de calcul due à SUGARMAN, de déterminer l'énergie cinétique E du fragment dans le système du centre de masse (plus exactement du noyau-cible), ainsi que la vitesse d'entraînement v du noyau-cible.

La méthode des reculs en cible mince (POSKANZER, COMMING, WOLFANG)⁽¹¹⁾, qui consiste à recueillir les fragments sur des feuilles placées à une certaine distance à différents angles, permet une analyse plus fine : on n'obtient plus seulement la valeur moyenne de

l'énergie mais un spectre d'énergie. De la même façon, on obtient une distribution de l'intensité en fonction de l'angle. Bien entendu, pour avoir des activités suffisantes, il faut des sections efficaces et des périodes de valeurs convenables.

Résumons l'apport des méthodes radiochimiques :

a) Variation des sections efficaces avec l'énergie et la nature de la particule incidente.

Les premières indications ont été obtenues à l'aide des émulsions mais c'est incontestablement la radiochimie qui a fourni, dans ce domaine, les résultats les plus précis et les plus nombreux.

Les fonctions d'excitation présentent typiquement une croissance extrêmement rapide entre 0,3 et 3 GeV (fig. 2). La croissance est ensuite plus lente et il semble qu'entre 10 et 30 GeV, il n'y ait pratiquement plus de variation dans les sections efficaces.

Cette augmentation très rapide de section efficace contraste avec l'augmentation très lente de l'énergie moyenne transférée au noyau au cours de la cascade intranucléaire⁽¹²⁾. Ceci suggère que, seuls, les noyaux ayant reçu une très forte énergie d'excitation pourront émettre des fragments tels que ^{24}Na . CRESPO, ALEXANDER et HYDE⁽¹³⁾, qui font cette remarque, évaluent ainsi à 500 ou 700 MeV l'énergie d'excitation d'un noyau émettant du ^{24}Na .

Une autre constatation importante est l'influence de la nature de la particule incidente. CRESPO et al.⁽¹³⁾, ainsi que KORTELING et HYDE⁽¹⁴⁾, ont montré, qu'à énergie égale, les sections efficaces de production sont environ deux fois plus élevées par α que par protons, ce qui paraît difficilement réconciliable avec l'hypothèse de WOLFANG et al.⁽²⁾, faisant jouer à la production et à la réabsorption de mésons π un rôle fondamental dans ce processus.



Fig. 2 : Fonctions d'excitation pour la production de ^{24}Na à partir de diverses cibles (d'après CRESPO et al. ⁽¹³⁾).

On remarque la croissance très rapide des sections efficaces entre 0,3 et 3 GeV. La croissance se poursuit ensuite plus lentement jusque vers 10 GeV.

b) Variation de la section efficace en fonction de la nature de la cible.

Cette étude a été faite par plusieurs auteurs et donne des résultats dont l'allure est assez différente suivant la nature des fragments émis. Nous discuterons plus en détails cette question au chapitre V, en liaison avec le résultat de notre travail.

c) Données apportées par les expériences de recul.

Les expériences à l'aide de cibles épaisses⁽¹³⁾ permettent de déterminer l'énergie cinétique moyenne des fragments ainsi que la vitesse d'entraînement du noyau-émetteur.

L'énergie cinétique moyenne des fragments (mesurée dans le référentiel en mouvement) est une fraction notable (0,7 environ) de la répulsion coulombienne entre deux sphères massives considérées comme protagonistes principales de la réaction. On en déduit donc que tel est bien le cas et que les fragments observés ne sont pas des résidus de spallation.

La vitesse d'entraînement du noyau-émetteur est due, dans le cadre du modèle en deux étapes, à la quantité de mouvement transférée au cours de la cascade. L'expérience montre que p_T varie linéairement avec la masse du noyau-cible.

Or, les calculs à la Monte-Carlo, montrent que p_T est proportionnel à l'énergie d'excitation résiduelle E (et la relation est pratiquement indépendante du noyau-cible).

Par conséquent, les expériences de reculs tendraient à prouver que E varie avec la masse de la cible. Cependant, l'analyse des fonctions d'excitation laisse penser au contraire que E est indépendant du A de la cible. Les auteurs voient là une contradiction et concluent que le modèle en deux étapes distinctes ne s'applique pas à ce genre de phénomènes.

Les expériences de reculs en cibles minces (CUMMING, CROSS, HUDIS et POSKANZER) permettent de déterminer d'une part la distribution angulaire et d'autre part le spectre des vitesses à différents angles pour ^{24}Na émis par $p_2\text{GeV} + \text{Bi}$ (15).

Si le modèle en deux étapes s'applique, dans le système du noyau en mouvement, la distribution angulaire des intensités et des vitesses doit être symétrique par rapport à 90° . Ceci exprime le fait que, au moment de la seconde étape, le noyau doit avoir perdu la "mémoire" de la première (au moment angulaire près). L'expérience montre qu'il est impossible de trouver un référentiel en mouvement unique qui satisfasse à cette condition à la fois pour les intensités et pour les vitesses. Les auteurs en déduisent là aussi que le modèle de réaction en deux étapes n'explique pas ces réactions.

Notons que, dans ces expériences, on retrouve pour les spectres d'énergie les faits observés dans les émulsions : le spectre présente qualitativement l'allure d'un spectre d'évaporation. Cependant, là aussi, l'estimation de la température donne des énergies d'excitation voisines de l'énergie totale de liaison des noyaux.

III - NOUVELLES TECHNIQUES D'ETUDE

Deux méthodes, dont l'emploi a été proposé, sont susceptibles d'amener dans un proche avenir des résultats intéressants sur les réactions de fragmentation.

a) Détecteurs solides montés en télescope.

En mesurant, à l'aide de détecteurs solides minces ou épais, respectivement $\frac{dE}{dx}$ et E , en plaçant ces détecteurs à différents angles, on peut, en principe, étudier la distribution en énergie et en angle des fragments. On pourrait, de même, étudier les corrélations en angle entre fragments.

On peut, de cette façon, identifier la charge des fragments jusqu'à $Z = 11$ environ. La résolution est suffisante pour séparer les isotopes (au moins pour les éléments les plus légers⁽¹⁶⁾) et ceci constitue un net progrès sur l'émulsion.

La mesure des énergies est également beaucoup plus aisée : les hauteurs d'impulsion donnent directement, après étalonnage, l'énergie perdue par la particule.

Il est évidemment trop tôt pour dire quel pourrait être l'apport de cette technique nouvelle qui, jusqu'ici, n'a été appliquée qu'à la fission. Jusqu'à présent, les propositions qui sont faites ne contiennent pas d'idées nouvelles mais visent à faire, avec une précision plus grande, les mesures de spectre d'énergie et d'angle déjà effectuées dans certains cas par émulsion ou par radiochimie. Ceci est évidemment nécessaire lorsqu'on considère les incertitudes qui, indépendamment de toute interprétation, règnent encore sur les faits expérimentaux.

Cependant, il faut être conscient du fait que l'interprétation des résultats risque d'être difficile : les réactions de fragmentation sont plus complexes du point de vue cinématique que les réactions de fission ou que celles dans lesquelles interviennent une particule α et un partenaire massif. On risque donc de se trouver finalement devant les mêmes difficultés que celles auxquelles conduisent les expériences d'émulsion ou de reculs.

Le plus original serait peut-être d'essayer de préciser les indications sur les corrélations entre fragments, fournies par les émulsions. Il ne faut pas oublier, toutefois, qu'il s'agit d'événements rares et que des temps d'accélérateur longs seront nécessaires pour avoir des statistiques suffisantes.

Quoi qu'il en soit, il est certain que plusieurs groupes auprès des accélérateurs d'Argonne⁽¹⁷⁾, de Brookhaven⁽¹⁸⁾ et du CERN⁽¹⁹⁾ se

préparent à appliquer cette technique à l'étude des réactions à grande énergie et qu'il en résultera certainement un approfondissement très utile de nos connaissances dans ce domaine.

b) Utilisation de l'émulsion nucléaire comme détecteur de fragments émis par une cible placée dans un champ magnétique.⁽²⁰⁾

On se propose ici d'identifier les fragments en mesurant leur impulsion (rayon de courbure dans le champ magnétique) et les grandeurs E et $\frac{dE}{dx}$ par la mesure dans l'émulsion respectivement des parcours et des densités de grain.

Par rapport aux techniques électroniques dont nous venons de parler, l'emploi d'un champ magnétique apporte un paramètre supplémentaire qui compense la précision moins bonne dans la mesure de E et $\frac{dE}{dx}$. On peut, par ailleurs, opérer dans des faisceaux pulsés, présentant un faible cycle utile, et les temps d'irradiation requis seraient plus faibles que pour les méthodes employant les compteurs.

Il est certain que cette expérience renouvelle la technique des émulsions et il sera intéressant de voir quels résultats physiques nouveaux seront ainsi apportés.

IV - CONCLUSION

Nous pensons qu'il est clair, au terme de cette brève discussion, qu'aucune technique ne peut prétendre dans ce domaine apporter à elle seule une explication décisive des phénomènes. Bien au contraire, les progrès ont résulté de la confrontation de résultats obtenus par des méthodes variées.

Nous nous sommes proposés de montrer, au cours de ce travail, que la spectrométrie de masse peut apporter une contribution intéressante en fournissant des renseignements difficiles ou impossibles à obtenir d'une autre façon.

Il s'agit essentiellement, dans ce domaine, de remédier aux insuffisances de la radiochimie. En effet, dans la région des fragments légers, la plupart des nuclides sont ou stables, ou de périodes trop courtes pour se prêter à une étude radiochimique. C'est ainsi qu'une caractéristique aussi importante que la distribution des masses reste encore à établir dans le cas de la fragmentation. On remarquera la différence avec la fission où une telle distribution a été établie de façon complète grâce à la radiochimie.

Comme on le sait, la spectrométrie de masse permet, en principe, l'étude des isotopes stables. La quantité infinitésimale de matière à doser constitue une difficulté sérieuse. Nous avons pu, cependant, la surmonter dans le cas des éléments alcalins Li et Na, de sorte que ce travail apporte les premiers résultats sur l'étude des fragments stables^(°).

La précision dans la mesure des sections efficaces relatives est supérieure à celle que l'on obtient habituellement dans ce genre d'études. Elle peut être de quelques % et ceci offre la possibilité d'étudier de façon fine la corrélation existant entre la composition neutron/proton du fragment et celle de la cible.

L'avantage du spectromètre de masse ne se limite pas aux nuclides stables : si l'on parvient à une sensibilité suffisante, on pourra étudier au fur et à mesure de leur formation les fragments des périodes les plus courtes en associant directement le spectromètre de masse à un accélérateur de particules. Dans ce domaine également, notre travail présente les premiers résultats qui aient pu être obtenus dans ce développement nouveau de la spectrométrie de masse.

Dans les chapitres qui suivent, nous exposerons les solutions expérimentales que nous avons adopté et les résultats auxquels nous avons abouti. Si ceux-ci ne sont pas très nombreux à l'heure actuelle,

(°) en même temps qu'un travail en cours mais non encore publié sur les isotopes du Néon⁽²¹⁾.

c'est pour une part à cause de la difficulté d'obtenir des irradiations auprès des grands accélérateurs. Cependant, s'il s'agit d'un effort qui devra être poursuivi, il nous semble d'ores et déjà acquis que la spectrométrie de masse peut être un outil efficace dans l'étude des réactions nucléaires à grande énergie.

CHAPITRE II

METHODE EXPERIMENTALE : GENERALITES

I - DIFFICULTES DU PROBLEME

Comme nous l'avons signalé au chapitre précédent, il s'agit de doser de très petites quantités de matière. Compte tenu des sections efficaces de ces réactions et des flux de protons disponibles auprès des grands accélérateurs, nous avons dû opérer avec 10^8 à 10^{11} atomes de Li (soit 10^{-15} à 10^{-12} g).

Sauf dans le cas particulier des gaz rares⁽²²⁾, les spectromètres de masse n'ont pas, en général, une telle sensibilité et il convient pour l'obtenir d'améliorer à la fois la production des ions dans la source et la sensibilité de détection au collecteur.

Une difficulté plus sérieuse encore est causée par l'extrême dilution de ces atomes dans la cible (10^{-10} à 10^{-12} atome/atome).

On sait que les radiochimistes, pour effectuer dans les mêmes conditions des séparations chimiques, ajoutent couramment à leur solution une quantité importante d'un "entraîneur" (isotope stable du nuclide à étudier) qui facilite les opérations chimiques sans perturber les mesures de radioactivité. Dans notre cas, comme nous voulons doser les isotopes stables, cette possibilité est évidemment interdite : tout au contraire, il faudra éviter soigneusement toute manipulation qui puisse mettre en contact l' "échantillon" à analyser avec de l'élément naturel.

Il n'existe pas de méthode générale permettant de traiter des échantillons aussi petits. Aussi avons-nous dû imaginer des procédés adaptés à nos problèmes et nous les décrirons plus loin. Sans prétendre que ces procédés soient universels, nous pensons que l'approche que

nous avons utilisée à cette occasion pourrait être adaptée à d'autres cas et qu'elle peut être considérée comme une contribution à une doctrine plus générale.

Nous proposons d'appeler "femtochimie"^(°) l'ensemble des procédés permettant de traiter des quantités de l'ordre de 10^{-15} g sans contamination.

II - SENSIBILITE DU SPECTROMETRE DE MASSE AUX TRES FAIBLES QUANTITES DE MATIERE

De façon générale, on sait qu'un spectromètre de masse est constitué de dispositifs réalisant trois fonctions distinctes :

- production des ions ;
- analyse en masse ;
- détection des ions après l'analyse.

En ce qui nous concerne, nous avons utilisé un spectromètre du type de NIER dans lequel l'analyse en masse est effectuée par le passage des ions accélérés sous 3 kV à travers un prisme magnétique de 60° et de rayon $r = 15$ cm.

Nous insisterons plus particulièrement ci-dessous sur la production et la détection des ions qui interviennent seules dans la sensibilité du spectromètre de masse.

a) Production des ions

Deux méthodes principales sont utilisées pour produire les ions dans les spectromètres de masse : le bombardement électronique de gaz ou de vapeurs et l'émission thermoionique à partir d'échantillons solides. Une revue très complète de ces questions a été donnée par HINTENBERGER⁽²³⁾.

(°) D'après la nomenclature officielle : 10^{-15} g = 1 femtogramme. La microchimie étant la chimie à l'échelle du microgramme, on peut appeler, par analogie, femtochimie la chimie du femtogramme.

Le bombardement électronique se caractérise par un très faible rendement d'ionisation ($\ll 10^{-4}$). Il n'est donc pas utilisable pour ce type d'étude. Dans le cas de gaz rares, un artifice ingénieux permet d'opérer néanmoins avec de très petites quantités de gaz : le spectromètre est fermé sur lui-même de sorte qu'un ion se neutralisant au collecteur puisse revenir dans la région de la source où il a une certaine probabilité d'être ionisé à nouveau. REYNOLDS⁽²²⁾ a pu doser ainsi 10^6 atomes de Xe.

Pour notre part, nous nous sommes servis de l'émission thermoionique dont nous rappellerons ci-dessous quelques propriétés.

1°) Emission de surface ou émission thermoionique

L'équilibre entre ions positifs et atomes neutres au contact d'une surface métallique chauffée est régi par la loi de SAHA-LANGMUIR :

$$\frac{n^+}{n_0} = A \exp \left[(W - \phi) / KT \right]$$

n^+ nombre d'ions positifs

n_0 nombre d'atomes neutres

A poids statistique (égal à 0,5) dans le cas des alcalins

W travail d'extraction des électrons du métal

ϕ potentiel d'ionisation de l'élément étudié

La figure 3 montre la variation du rendement d'ionisation pour différentes températures avec $(W - \phi)$. Les valeurs du travail d'extraction des métaux varient assez peu autour de 5 V. Le tableau I donne certaines valeurs usuelles.

	Re	Pt	Rh	Ta	W	C
W (volts)	5, 1	5, 32	4, 80	4, 19	4, 52	4, 60

Tableau I

Travail d'extraction pour quelques métaux usuels

Il est connu par contre que les potentiels d'ionisation des éléments varient notablement suivant leur place dans la classification périodique.

On peut donc remarquer que ce processus est extrêmement sélectif. Etant donné les valeurs de leurs potentiels d'ionisation, les alcalins s'ionisent avec un rendement très supérieur à celui des autres éléments.

Exemple : ionisation sur Pt à 1400° C

$$\frac{\text{Li}^+}{\text{Li}} = 20 \% \qquad \frac{\text{Be}^+}{\text{Be}} \simeq 10^{-12} \qquad \frac{\text{He}^+}{\text{He}} \simeq 10^{-57}$$

Il s'agit donc d'une séparation pratiquement quantitative qui, sans aucune manipulation, est l'équivalent d'une séparation chimique au sens classique du terme. On verra dans la suite de ce travail que nous avons très largement fait appel à cette sélectivité.

Le Li ($\phi = 5,4 \text{ eV}$) est l'alcalin dont l'ionisation est la moins facile.

Le Cs ($\phi = 3,89 \text{ eV}$) s'ionise facilement sur presque toutes les surfaces mais, par contre, se distinguera avec précaution du Ba ($\phi = 5,21 \text{ eV}$). NGUYEN LONG DEN⁽²⁴⁾ a mis à profit cette propriété pour étudier les isotopes du Cs produit par spallation du La.

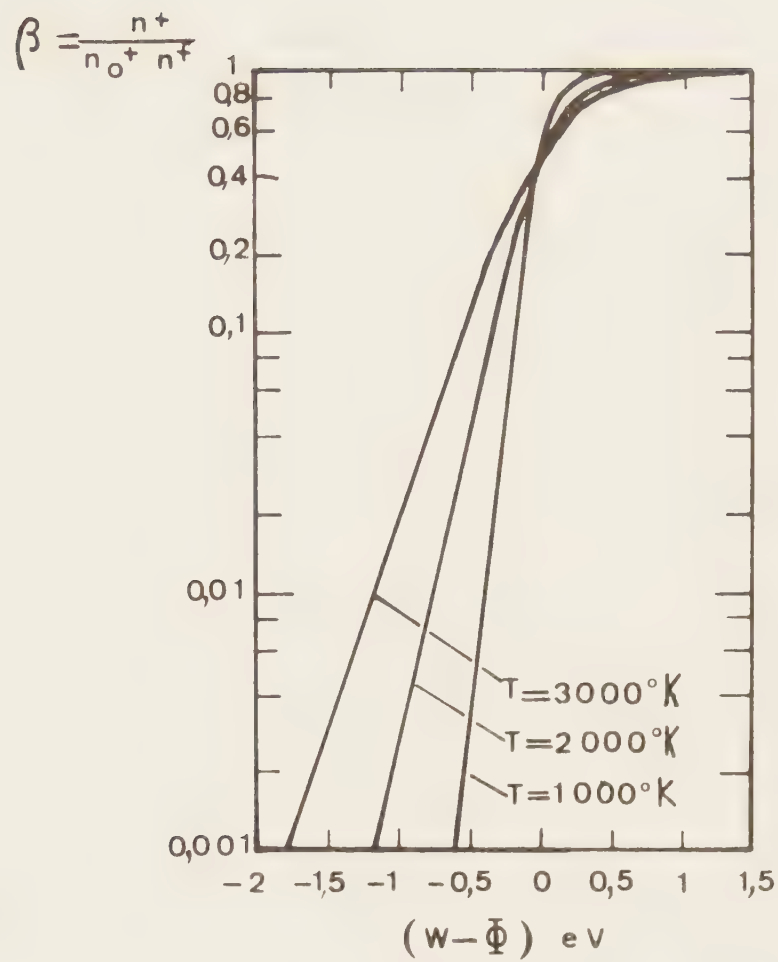


Fig. 3 : Variation du rendement d'émission thermoionique, à différentes températures, en fonction de la différence $(W - \Phi)$.

On voit donc l'intérêt que présente l'émission thermoionique pour l'étude que nous voulions entreprendre. Certes le rendement d'ionisation n'est bon que pour un petit nombre d'éléments. Cependant, il peut paraître raisonnable, pour une première étude des isotopes stables produits au cours de la fragmentation, de se borner pour l'instant aux éléments alcalins Li et Na.

Tel a été le point de vue que nous avons adopté et, comme nous l'avons fait remarquer plus haut, la spécificité présente, dans ces conditions, beaucoup plus d'avantages que la limitation ne présente d'inconvénients.

Signalons enfin qu'un procédé d'ionisation très différent permet maintenant d'étendre ces études à des éléments tels que Be et B⁽²⁵⁾.

2°) Disposition pratique de la source d'ions

La source d'ions à 3 filaments est du type de GRADSZ TAJN⁽²⁶⁾. Le fait que les filaments soient démontables s'est avéré extrêmement utile pour les expériences. Le rendement de cette source a été discuté par GRADSZ TAJN et nous renvoyons à son travail sur ce point⁽²⁶⁾. Compte tenu de la transmission du spectromètre, on peut estimer un rendement de l'ordre de 1 % et il nous a semblé difficile de faire beaucoup mieux.

Nous allons voir d'ailleurs que, si la sensibilité de détection est suffisante, ce procédé permet de doser effectivement les quantités de l'ordre de 10^{-15} g qui nous intéressent. C'est pourquoi nous avons porté l'essentiel de notre effort sur la détection des ions.

b) Détection des ions

La détection classique par amplificateur de courant étant limitée à 10^{-13} A, il a été nécessaire de faire appel au multiplicateur d'électrons. On sait que dans ce dispositif l'utilisation du phénomène

d'émission secondaire permet de recueillir sur la dernière dynode une quantité d'électricité $q = Ge$ par ion incident. G , gain du multiplicateur, est donné par :

$$G = \gamma \delta^n$$

γ : nombre moyen d'électrons par ion initial

δ : coefficient de multiplication des électrons secondaires par étage

n : nombre d'étages

On peut l'employer en spectrométrie de masse, soit comme étage amplificateur de courant, soit pour compter les ions coup par coup.

En associant à un électromètre à condensateur vibrant un multiplicateur monté en amplificateur de courant de gain $G = 2.10^3$, on peut mesurer un courant de 5.10^{-17} A (fig. 11) de la référence (26). Cependant, la précision des mesures à ce niveau est limitée par les fluctuations statistiques d'arrivée des ions au collecteur pendant un temps de l'ordre de la constante de temps du système ($RC = 1/10$ de seconde). La limite d'utilisation pratique nous semblant plutôt de 5.10^{-16} A (fig. 10 de la référence (26)). Il est clair qu'une augmentation du gain du multiplicateur ne changerait rien à cette situation.

Etant donné la sensibilité qui nous est nécessaire, il semble donc indiqué d'employer le comptage individuel des ions.

Emploi du multiplicateur en comptage d'impulsions

Cette technique, introduite dès 1954 par WHITE et COLLINS⁽²⁷⁾, a été assez peu employée par la suite. La plupart des applications de la spectrométrie de masse (analyses isotopiques usuelles, géochimie, datage des minéraux, étude des météorites, etc...) ne nécessitant pas une telle sensibilité.

Le montage de principe est représenté sur la figure 4. L'arrivée d'un ion sur la première dynode se traduit par l'arrivée des électrons sur la dernière, donc par une variation de potentiel $v = \frac{Ge}{C}$. C (10 pF) étant la capacité entre dynode et masse. Avec une résistance de charge de 75 ohms, on constitue un circuit de différenciation ($RC = 10^{-9}$ s) qui transforme la variation de potentiel continu en une impulsion de tension dont la hauteur est proportionnelle au gain du multiplicateur. Sa valeur est rappelée dans le tableau II.

G	10^3	10^5	10^6	10^7	10^8
δv millivolts	$1,6 \cdot 10^{-2}$	1,6	16	160	1600

Tableau II
Hauteur de l'impulsion en fonction du gain du multiplicateur
d'électrons

Pour compter sans difficultés les impulsions, il faut disposer d'un multiplicateur de gain suffisant. Nous avons utilisé une structure à 17 étages en Cu - Be, fournie par le laboratoire de l'Ecole Polytechnique de Zurich (ETH). Il est connu qu'une structure de ce type donne, au début de son utilisation, un gain très élevé (de l'ordre de 10^9). Ce gain diminue rapidement pour se stabiliser en général vers 10^5 à 10^6 .

Pensant que cette chute de gain pouvait être due à une destruction des dernières dynodes par un courant trop intense, nous avons été attentifs à limiter le taux de comptage à un maximum de $5 \cdot 10^4$ /s. Dans ces conditions, nous avons pu maintenir pendant plusieurs mois un gain supérieur à $2 \cdot 10^7$.

L'impulsion ainsi obtenue, d'une hauteur moyenne de 200 à 300 mV, est envoyée sans autre amplification dans le discriminateur d'entrée d'un circuit de comptage à transistors SEN dont le seuil peut être réglé à 150 mV environ. Afin de nous assurer que ce seuil sépare le signal du bruit de fond, nous avons tracé le spectre d'amplitude de ces impulsions à l'aide d'un sélecteur multicanaux (fig. 5).

Finalement, l'emploi de ce procédé permet effectivement d'enregistrer l'arrivée au collecteur d'ions individuels. La mesure est précise (le temps mort de $3 \cdot 10^{-8}$ s donne un taux de pertes inférieur à 0,3 %) et commode (la forme numérique des informations facilite leur traitement ultérieur par des moyens automatiques). La sensibilité ainsi améliorée par rapport à des méthodes plus classiques n'est plus limitée que par les différents bruits de fond dont nous distinguerons deux sources de nature différente.:

1°) un mouvement propre du multiplicateur d'électrons et de l'appareillage électronique associé. Il correspond à la partie de faible amplitude du spectre des impulsions (fig. 5) et nous avons vu que l'emploi d'un discriminateur à seuil réglable permet de le supprimer presque entièrement. Le niveau résiduel obtenu est de quelques coups par minute.

2°) un bruit lié à la source d'ions qui se traduit par la présence entre les pics d'un fond continu d'importance variable. Quelques constatations expérimentales donnent des éclaircissements sur la nature de ce fond.

Il disparaît avec la tension d'accélération (il est donc lié à la présence d'ions accélérés). Il varie peu avec le champ magnétique et subsiste même à champ nul (il est donc indépendant de la masse des ions). Il ne varie pas si on applique au collecteur une tension répulsive (ceci indique qu'il s'agirait d'atomes neutres plutôt que d'ions). Ces faits s'interprètent en remarquant que le rebondissement d'ions accélérés

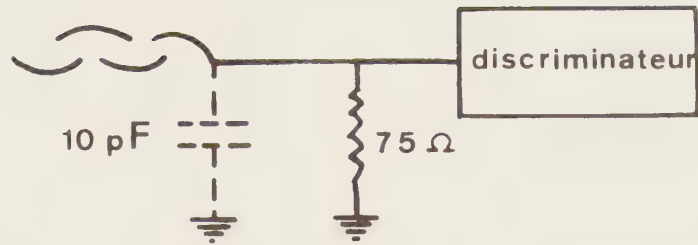


Fig. 4 : Montage de principe du multiplicateur d'électrons employé en comptage d'impulsions.

(page 21)

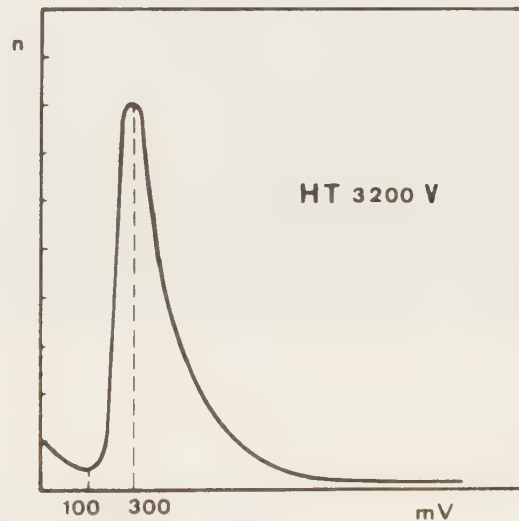


Fig. 5 : Spectre d'amplitude des impulsions obtenues à l'aide d'un multiplicateur d'électrons de 17 étages au Cu - Be (HT = 3400 volts). On remarque que, dans le cas d'un multiplicateur à fort gain ($> 10^7$), l'emploi d'un discriminateur à seuil permet de supprimer la partie de faible amplitude du spectre qui correspond à des bruits de fond.

(page 22)



Fig. 6 a : Tube de déflexion des ions.

On remarquera le prolongement de la section droite d'accélération destiné à éviter les réflexions parasites d'ions.

(page 23)

(voir page 31, fig. 6, une vue générale du spectromètre de masse)

sur un tube incliné à 60° conduira à des impacts parasites de neutres rapides sur le collecteur malgré la présence de diaphragmes qui ne peuvent éliminer les rayons peu inclinés sur l'axe.

Cette hypothèse nous a conduit à prolonger la section droite d'accélération par un renflement jouant le rôle de piège qui évite les réflexions parasites (fig. 6). On élimine ainsi presque totalement le bruit de fond. Il ne subsiste plus dans les conditions courantes que 10 à 20 coups par seconde.

En résumé, l'emploi des méthodes de comptage individuel des ions est très bien adapté à notre objectif : la précision est satisfaisante et la sensibilité de quelques dizaines d'ions par seconde est suffisante pour doser 10^8 atomes, la limite provenant plutôt des problèmes liés à la manipulation de petits échantillons que nous allons examiner maintenant.

III - FEMTOCHIMIE : PROCÉDES MIS EN ŒUVRE POUR TRAITER DES ÉCHANTILLONS DE L'ORDRE DE 10^{-15} g.

Il ne suffit pas, pour étudier la production d'isotopes stables dans les réactions nucléaires, de disposer d'un spectromètre de masse sensible. Il faut en outre :

- a) préparer des cibles contenant une quantité résiduelle d'isotope naturel négligeable par rapport au produit de la réaction ;
- b) extraire, après irradiation, les produits formés afin de procéder à leur analyse.

On se représentera l'extrême dilution des atomes produits dans la cible en notant qu'au cours d'une réaction nucléaire la proportion d'atomes transformés est :

$$F = \frac{\Delta N}{N} = \frac{\sigma n}{S}$$

N : nombre d'atomes de la cible

n : nombre de protons traversant la cible

σ : section efficace de la réaction

S : surface de la cible

Avec 10^{15} protons traversant une cible de 1 cm^2 , on obtiendra une concentration de 10^{-12} pour une section efficace de 1 mb .

On doit renoncer à ce niveau à toutes les méthodes chimiques de séparation (dissolution de la cible, extraction par solvant ou par résine échangeuse d'ions) très employées en radiochimie ou en spectrométrie de masse des radioéléments artificiels^{(28) (29)}. La raison en est que les réactifs purs n'existent pratiquement plus à ces dilutions. Même l'eau tridistillée dans du quartz présente encore une concentration de Li naturel de l'ordre de 10^{-11} à 10^{-12} g (g que l'on peut d'ailleurs doser par dilution isotopique⁽²⁶⁾). De plus, nous avons déjà fait remarquer que l'addition "d'entraîneurs", si utilisée en radiochimie, est ici absolument proscrite.

Dès le début des études entreprises au Laboratoire sur la production d'isotopes stables dans les réactions nucléaires, ces difficultés avaient été clairement comprises. Aussi s'est-on attaché à n'employer progressivement que des procédés d'extraction purement physiques que nous allons décrire et discuter avant de passer, au chapitre suivant, à la description des méthodes que nous avons été amenés à introduire plus récemment.

Discussion des méthodes précédemment utilisées au Laboratoire

1 - Irradiation de ^{16}O : méthode de la glace

On a pu mesurer ainsi les sections efficaces de production de ^6Li et ^7Li à partir de ^{16}O (30). Un travail semblable est en cours pour ^9Be , ^{10}B et ^{11}B (25)

On prépare (tridistillation, échange d'ions, etc...) une cible de glace ayant la pureté requise. Après l'irradiation dans le faisceau externe d'un accélérateur, on laisse fondre la glace et les gouttes d'eau sont recueillies et évaporées sur un filament de spectromètre de masse qui servira à déterminer les rapports isotopiques.

La concentration est obtenue ici en évaporant la masse de la cible, ce qui n'est pratiquement possible dans de bonnes conditions que dans ce cas.

2 - Cas des éléments réfractaires

a) principe de la méthode : la séparation est basée sur la grande différence de tension de vapeur entre produit de réaction et cible. Le dispositif expérimental a été décrit en détail par ailleurs (26) et nous ne rappellerons ici que le principe.

La cible, placée dans un four est chauffée par bombardement électronique à l'intérieur d'une enceinte évacuée. Les produits de réaction diffusent hors de la cible et viennent se condenser sur un ruban de platine refroidi situé au voisinage de l'ouverture du four. Ce ruban est ensuite inséré dans la source d'ions précédemment décrite et l'analyse isotopique est effectuée.

Avant l'irradiation, on "purge" la cible des dernières traces d'élément naturel qu'elle pourrait contenir en la soumettant à un chauffage prolongé et sa pureté est contrôlée dans les conditions mêmes où s'effectuera l'analyse.

Après irradiation, on effectue plusieurs extractions successives afin de bien vérifier, par la constance du rapport isotopique trouvé, l'absence d'une contamination éventuelle.

b) exemple de résultat obtenu par cette méthode : sections efficaces de ${}^6\text{Li}$ et ${}^7\text{Li}$ dans ${}^{12}\text{C}$ (30) :

Les cibles de graphite de $5 \times 10 \times 0,5 \text{ mm}^3$ sont irradiées trois heures au faisceau interne du synchrocyclotron de 150 MeV. Le Li est alors extrait de la cible et transféré sur le filament d'analyse.

Remarquons qu'en toute rigueur le spectromètre de masse ne permet de mesurer que des rapports isotopiques (et non des quantités absolues de matière). On n'obtient donc ainsi de façon directe que des sections efficaces relatives. Nous allons décrire un artifice qui permet cependant d'accéder aux sections efficaces absolues.

On mesure, en fonction du temps t , après l'irradiation, le rapport isotopique $R = {}^7\text{Li} / {}^6\text{Li}$ (tableau III).

Délai entre irradiation et analyse	4 jours	125 jours	240 jours
$R = {}^7\text{Li} / {}^6\text{Li}$	0,85	1,79	1,94

Tableau III

Variation du rapport mesuré $R = {}^7\text{Li} / {}^6\text{Li}$ en fonction du délai entre irradiation et analyse

La variation du rapport isotopique dans chacune des trois cibles analysées provient de la fraction plus ou moins grande de ${}^7\text{Li}$ "radiogénique" formé par décroissance du ${}^7\text{Be}$. On a, après un temps t :

$$R = \frac{\sigma({}^7\text{Li}) + (1 - e^{-\lambda t}) \sigma({}^7\text{Be})}{\sigma({}^6\text{Li})}$$

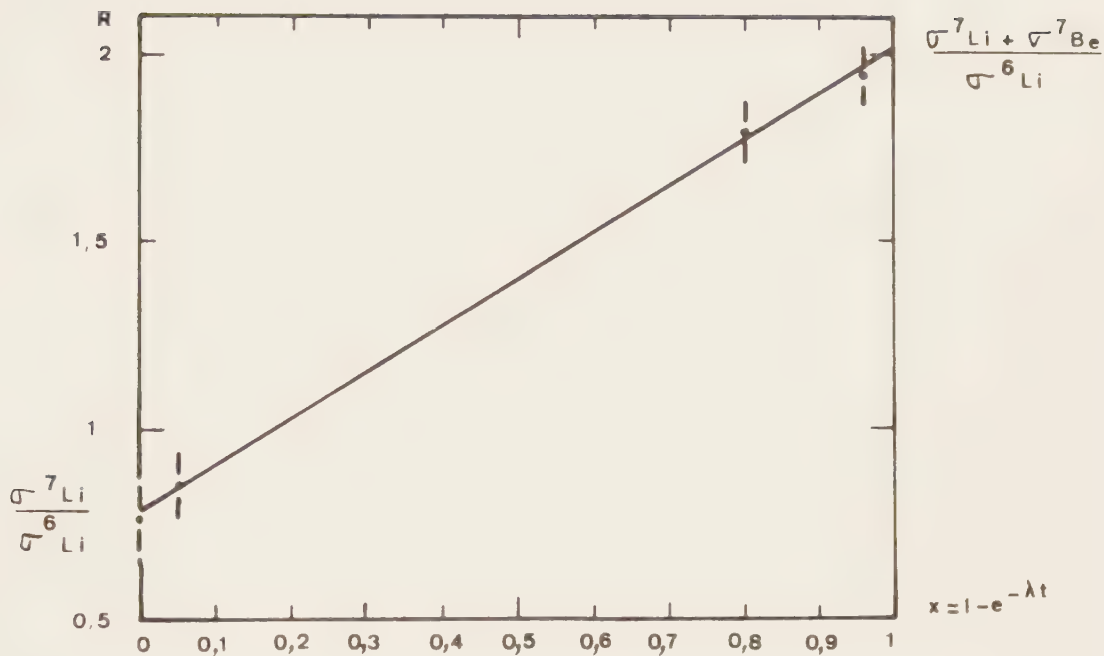


Fig. 7 : Variation du rapport mesuré $R = \frac{\sigma^{7\text{Li}}}{\sigma^{6\text{Li}}}$ en fonction du délai entre irradiation et analyse.

Les valeurs numériques concernent l'irradiation de ^{12}C par des protons de 150 MeV (tableau III).

La période du ^7Be étant connue ($T = 53 \text{ j}$), on peut porter (fig. 7) la variation du rapport R mesuré en fonction du paramètre $x = 1 - e^{-\lambda t}$.

On verra facilement que :

$$\sigma^6_{\text{Li}} = \frac{\sigma^7_{\text{Be}}}{R_{\infty} - R_0}$$

$$\sigma^7_{\text{Li}} = \sigma^7_{\text{Be}} \frac{R_0}{R_{\infty} - R_0}$$

Connaissant la section efficace du ^7Be dans ^{12}C à $150 \text{ MeV}^{(9)}$, on déduit :

$$\sigma^7_{\text{Li}} = 7,8 \text{ mb} \quad \text{et} \quad \sigma^6_{\text{Li}} = 9,8 \text{ mb}$$

Précision de ces mesures :

Un calcul simple montre que :

$$\frac{d\sigma^6_{\text{Li}}}{\sigma^6_{\text{Li}}} = \frac{d\sigma^7_{\text{Be}}}{\sigma^7_{\text{Be}}} + \frac{dR}{R} \frac{R_{\infty} + R_0}{R_{\infty} - R_0}$$

$$\frac{d\sigma^7_{\text{Li}}}{\sigma^7_{\text{Li}}} = \frac{d\sigma^7_{\text{Be}}}{\sigma^7_{\text{Be}}} + \frac{2 dR}{R} \frac{R_{\infty}}{R_{\infty} - R_0}$$

Les diverses causes d'erreur dans la détermination de R sont discutées par GRADSZ TAJN⁽²⁶⁾. On peut adopter $\frac{\Delta R}{R} = 5 \%$.

D'autre part, la section efficace du ^7Be est connue à 10% près. Comme ces deux estimations sont entièrement indépendantes, on obtient une meilleure estimation de l'erreur en effectuant une addition quadratique.

Nous adopterons finalement :

$\sigma^6\text{Li}$	=	9,8 mb	$\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$	16 %
$\sigma^7\text{Li}$	=	7,8 mb	$\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$	18 %

Nous présentons en annexe des résultats moins complets, mais néanmoins utiles, obtenus par cette méthode à l'aide de cibles de V Nb et Ta à 150 MeV.

c) inconvénients de cette méthode : pour l'étude d'isotopes stables, tels que ^6Li et ^7Li , cette méthode présente l'inconvénient majeur d'être très sensible à la contamination.

Malgré toutes les précautions prises, il est très difficile d'empêcher les condensations parasites sur le filament (qui est un point froid). A cet égard, même l'emploi d'un pompage ionique pour éliminer les vapeurs d'huile n'a pas amélioré la situation. On a pensé alors que le transfert de l'évaporateur au spectromètre de masse (qui impose un passage par la pression atmosphérique) pouvait être responsable de la contamination. On a donc enfermé tout l'évaporateur dans une boîte à gants, opéré en atmosphère contrôlée, etc... Ici encore, le résultat a été décevant, la contamination restant capricieuse et les résultats erratiques.

Néanmoins, l'appareil a fonctionné de façon satisfaisante à certaines périodes et nous pensons que les résultats obtenus, dans ces conditions, sont valables et ne sont pas entachés de contamination (les résultats sur ^{12}C ont d'ailleurs été confirmés par une expérience qui sera décrite au chapitre IV).

La contamination avait simplement pour effet de diminuer les périodes pendant lesquelles on pouvait se livrer à un travail utile. Afin de remédier à ces difficultés, nous avons mis au point une méthode où les manipulations sont encore plus réduites. Nous allons maintenant la décrire.

CHAPITRE III

ANALYSE DIFFEREE : METHODE DES FILAMENTS

I. - PRINCIPE ET CONDITIONS GENERALES D'APPLICATION

Dans les expériences de spectrométrie de masse dont il a été question jusqu'à présent, on analyse la composition isotopique d'une couche superficielle déposée sur un filament par un des procédés décrits au chapitre précédent. Dans le but de réduire les manipulations qui en résultent, nous nous sommes demandés si l'on ne pourrait pas analyser directement les atomes dilués dans un volume métallique, par exemple celui du filament lui-même. C'est le sens d'une expérience que nous avons réalisée et dont nous décrivons brièvement le principe.

La cible est un ruban de 1 mm de large et de quelques 1/100 de mm d'épaisseur. Après irradiation, ce ruban est inséré dans la source d'ions du type de GRADSZTAJN, exactement en lieu et place du filament recevant d'ordinaire le dépôt. En chauffant à haute température (1200°C par exemple), les atomes (Li, Na) produits uniformément en volume par la réaction nucléaire diffusent hors du ruban. L'ionisation a lieu en surface exactement comme dans le cas du dépôt et l'analyse en masse ne présente alors ~~aucun~~ problème particulier.

L'extraction et l'analyse sont ici réalisées simultanément et sous vide. On évite ainsi tout risque de contamination externe du dépôt par l'atmosphère du laboratoire.

La contamination interne due à l'atmosphère résiduelle de l'évaporateur (vapeurs d'huile, etc...) est également supprimée. En effet, le filament qui était un point froid dans la méthode précédente est ici le point le plus chaud et il n'y a donc pas de risque de condensation parasite.

Enfin, on suit continuellement l'évolution du courant d'ions et du rapport isotopique. S'il se produisait une contamination accidentelle, elle serait donc décelée immédiatement et non pas après coup comme dans la méthode d'évaporation séparée.

Le seul problème qui subsiste est celui de la pollution superficielle du ruban et de la nécessité d'un nettoyage de surface. Nous en discuterons plus loin.

Les avantages de ce procédé paraissent évidents. Pour comprendre dans quelles conditions générales il pourra être utilisé, il faut connaître quelques propriétés de la diffusion dans les corps solides. Nous les avons résumées en annexe et il nous suffira de donner ici l'expression générale du courant de matière diffusant hors d'un ruban indéfini d'épaisseur 2ℓ soit :

$$L = \frac{MD}{\ell^2} \left[e^{-\frac{\pi^2}{4} \frac{Dt}{\ell^2}} + e^{-\frac{9\pi^2}{4} \frac{Dt}{\ell^2}} + \dots + e^{-\frac{(2n+1)^2 \pi^2}{4} \frac{Dt}{\ell^2}} + \dots \right] \quad (1)$$

M est la quantité totale d'élément diffusant contenue dans le filament et D le coefficient de diffusion.

Il est commode de définir un temps caractéristique τ pour la diffusion

$$\tau = \frac{4}{\pi^2} \frac{\ell^2}{D}$$

Dans les cas qui nous intéressent, on ne connaît pas les valeurs de D mais notre méthode permet, comme nous le verrons plus loin, de mesurer τ directement. On observe à cet égard deux situations expérimentales bien distinctes :

- Diffusions "lentes" : 1 minute $\ll \tau \ll$ 1 heure. C'est le cas par exemple de la diffusion de Li et Na à partir de métaux réfractaires vers 1000 à 1300°C. Ce domaine est celui de la technique des filaments dont nous discutons.

- Diffusions "rapides" : $\tau < 1$ seconde. C'est le cas de la diffusion de Li dans des feuilles minces de graphite vers 1500°C . Ce domaine est celui de l'analyse directe par spectrométrie en ligne et fera l'objet du chapitre suivant.

L'équation (1) permet en outre de discuter l'influence de l'épaisseur du ruban sur le courant extrait. Pour un même flux de protons, le nombre total de noyaux formés est proportionnel à l'épaisseur ℓ .

Dans la méthode d'évaporation séparée on peut ainsi compenser le manque de sensibilité du spectromètre de masse en employant une cible plus épaisse qui donnera un dépôt plus important sur le filament et donc un courant plus intense au collecteur du spectromètre.

Ceci n'est plus possible dans la méthode du filament ainsi que le montre l'équation (1). Si la quantité totale M varie bien comme ℓ , le courant instantané varie comme $1/\ell$ et sera donc diminué dans le cas d'une cible plus épaisse : autrement dit, le nombre d'atomes est augmenté mais le temps nécessaire à l'extraction augmente encore plus vite. C'est pour cette raison qu'il nous a été nécessaire d'augmenter la sensibilité du spectromètre de masse en utilisant le comptage individuel des ions.

II - MISE EN OEUVRE EFFECTIVE DE LA METHODE.

1 - Description du spectromètre de masse utilisé.

La figure 6 représente une vue d'ensemble du spectromètre de masse que nous avons construit^(°).

Le manchon de source est refroidi par circulation d'eau. Un hublot permet la mesure de la température des filaments de la source

(°) Je remercie MM. Roger FERGEAU et Michel SALOME pour leurs multiples contributions à la réalisation de cet appareil.

à l'aide d'un pyromètre optique à lunette. Ce dispositif permet de mesurer la température à 10° près et d'opérer ainsi dans des conditions bien définies. Le tube de déflexion des ions présente un coude destiné à éviter le rebondissement d'ions plus lourds source de bruit de fond.

L'utilisation en comptage conduit à compter successivement pendant des temps déterminés sur les sommets des pics correspondant aux différents isotopes. Un comptage sur une position médiane fournit une indication du bruit de fond entre pics. Il est avantageux de réaliser automatiquement cette séquence d'opérations. La figure 8 représente un schéma fonctionnel.

Les impulsions sont comptées sur une échelle à temps prédéterminé. Le résultat numérique est ensuite "affiché" sur néons et perforé sur bande. Après perforation, on court circuite une résistance dans le circuit des bobines afin de changer la valeur du champ magnétique. Après un temps mort (15 secondes environ) destiné à permettre au champ de se stabiliser, un nouveau comptage est effectué et ainsi de suite.

La sortie des résultats sur bande perforée facilite l'exploitation ultérieure à l'aide de l'ordinateur CAB 500. En parallèle avec la voie numérique, un intégrateur relié à un enregistreur potentiométrique permet d'avoir une indication analogique destinée à faciliter les réglages et à suivre l'évolution du rapport isotopique.

Ce système automatique donne toute satisfaction. Toutefois, dans le cas de pics de très faible intensité, le réglage initial peut être délicat. On peut employer dans ce cas un système de balayage cumulatif qui sera décrit au chapitre suivant.

2 - Nettoyage des cibles et irradiation.

Le nettoyage des cibles est effectué par chauffage dans le spectromètre lui même. On emploie un support spécial (figure 9a) de façon à nettoyer un ruban plus grand que celui qui sera finalement analysé.

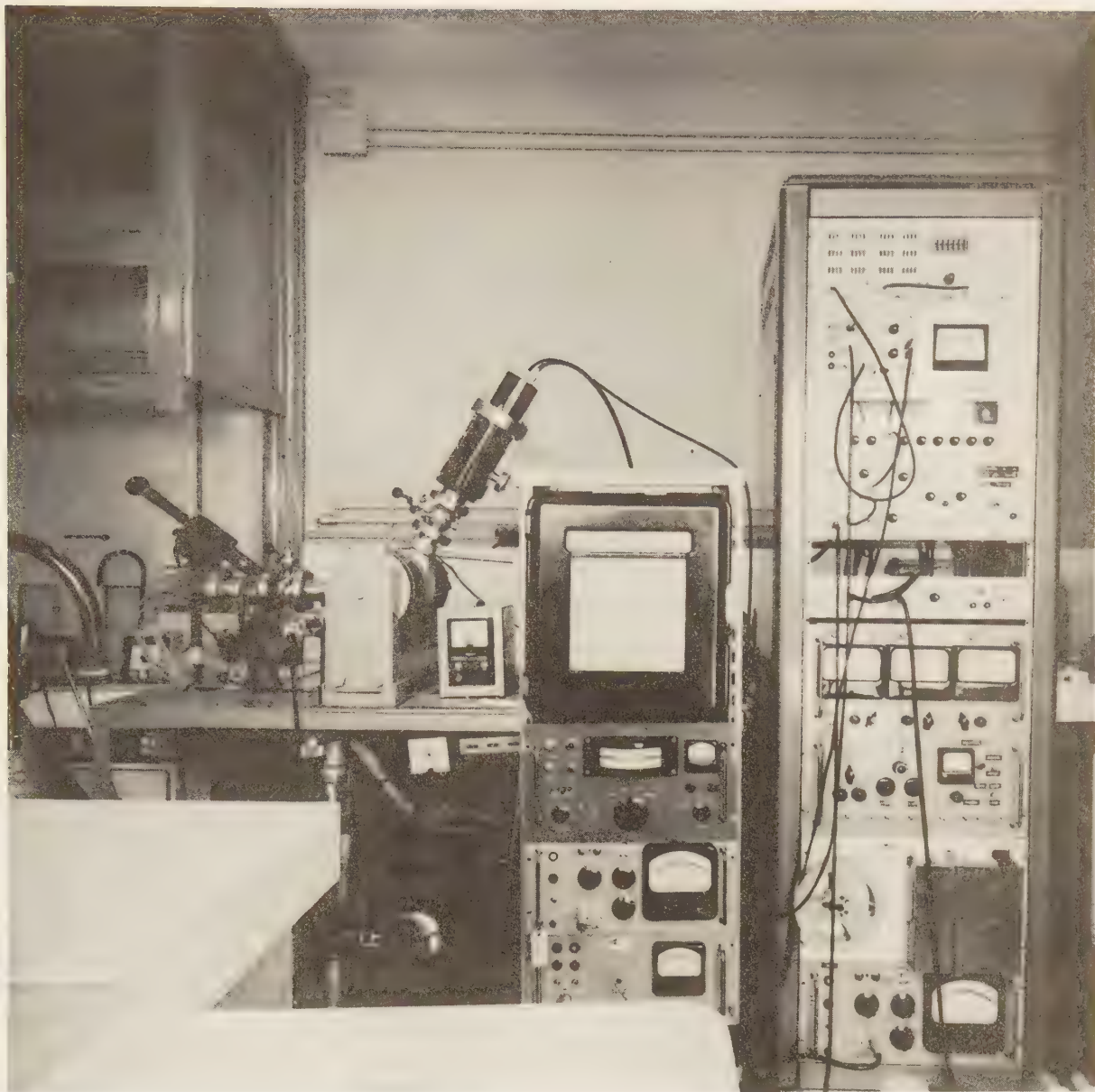


Fig.6 : Vue générale du spectromètre de masse
construit pour analyser les filaments

(pages 31 - 32)

(voir également le détail du tube de déflexion, page 23, fig.6a)

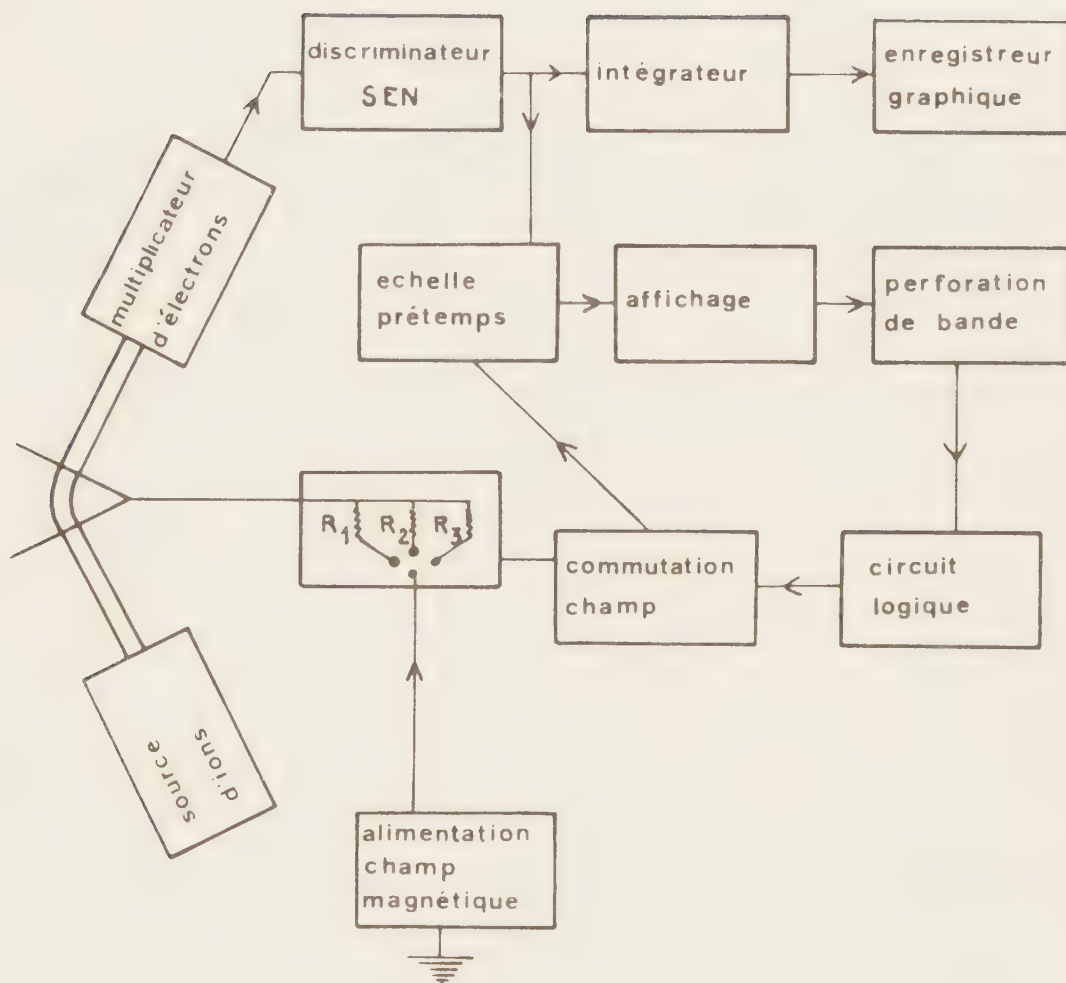


Fig. 8 : Schéma fonctionnel du dispositif de comptage automatique.

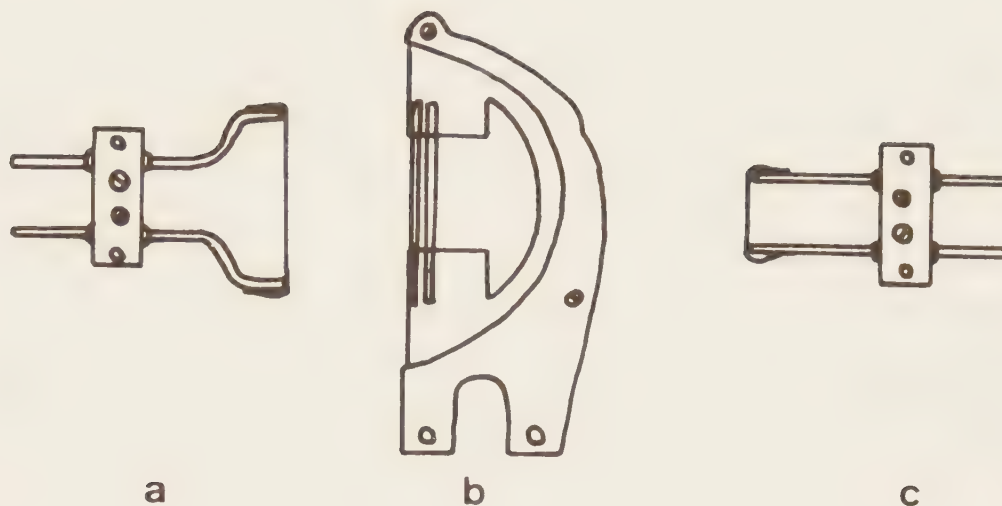


Fig. 9 :

a : Ruban long monté sur un support de nettoyage.

b : Le ruban propre est monté sur un porte-cible avant d'être irradié. Le dessin représente des rubans montés sur un porte-cible destiné au P. S. du CERN (on n'a pas représenté ici les feuilles de garde destinées à compenser les pertes par recul).

(page 35)

c : Support d'analyse.

On remarquera que les diverses manipulations ne portent que sur les extrémités des rubans et jamais sur la partie centrale.

(page 32)

Les rubans dont la propreté est constatée dans les conditions de température où sera effectuée l'analyse sont alors montés sur le porte-cible (figure 9b) et irradiés.

3 - Analyse isotopique.

Si l'intérieur de la cible, nettoyé à haute température, est et reste propre, les diverses manipulations durant l'irradiation peuvent par contre introduire une contamination superficielle dont il importe de se débarrasser.

Le ruban étant soudé électriquement sur un support d'analyse (figure 9c), les traces résiduelles d'impuretés superficielles sont éliminées dans le spectromètre lui-même par chauffage à une température suffisante pour désorber l'élément en surface alors que la diffusion en volume est encore négligeable.

Prenons l'exemple d'une analyse de Li dans Ta. On chauffe préalablement vers 1100° , le lithium de surface s'émet, alors et son rapport isotopique est caractéristique du lithium naturel. Soit $\frac{{}_7\text{Li}}{{}_6\text{Li}} \sim 12$. Le courant diminuant avec le temps, on chauffe progressivement. A partir d'une certaine température, le rapport isotopique décroît et se stabilise à une valeur voisine de 1,5 (figure 10). Cette valeur qui correspond aux ions diffusant de l'intérieur du ruban reste constante pendant toute l'analyse (à 1 ou 2 % près) quelles que soient les conditions de chauffage. En particulier, on ne remarque pas de variation du rapport isotopique due à l'épuisement au cours du temps et cela bien que la concentration varie de plusieurs ordres de grandeur entre le début et la fin de l'analyse.

Nous donnons ci-dessous un exemple typique des valeurs numériques enregistrées au cours d'une analyse à différentes températures et des rapports calculés à l'aide de la CAB 500.

TABLEAU IV

temperature °C	R mesuré $^7\text{Li}/^6\text{Li}$	Nombre de cycles	Intensité moyenne coups/seconde
1315	1,51	40	4300
1405	1,50	20	2000
1660	1,47	50	19000
1750	1,48	60	34000
1900	1,50	30	4000

Variation du rapport isotopique et de l'intensité au cours de l'analyse d'un ruban de Ta (AA5)

Une analyse isotopique complète peut être effectuée en quelques heures ce qui représente un gain de temps considérable par rapport à la méthode des évaporations séparées.

4 - Application à la mesure des coefficients de diffusion.

Très peu de coefficients de diffusion sont donnés dans la littérature. En particulier, ceux qui nous intéressaient n'étaient pas connus. Notre méthode fournit un moyen simple de les mesurer. On peut remarquer que si $t \gg \tau$, l'équation (1) se réduit à :

$$i(t) = \frac{M D}{\ell^2} e^{-\frac{\pi^2 D t}{4 \ell^2}}$$

et

$$\log i = \text{Cte} - \frac{\pi^2}{4} \frac{D t}{\ell^2}$$

Le calcul de la pente de cette droite par la méthode des moindres carrés permet de déterminer le coefficient de diffusion D connaissant l'épaisseur ℓ du ruban. Ces calculs sont effectués rapidement à l'aide d'un programme écrit pour la CAB 500. Les résultats sont donnés

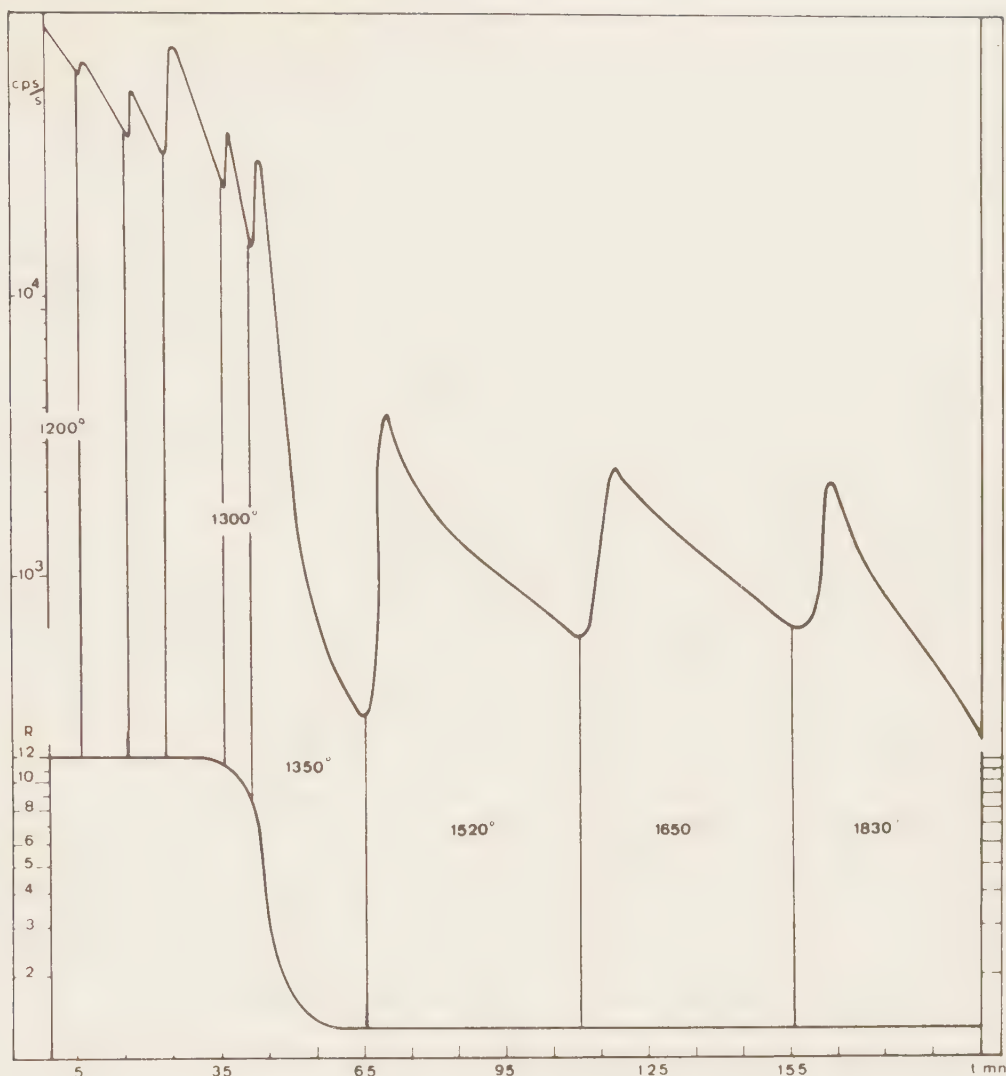


Fig. 10 : Variation de l'intensité et du rapport isotopique au cours d'une analyse Li dans Ta.

(page 33)

On a figuré ici, pour différentes températures, l'évolution de l'intensité ionique (haut) et du rapport isotopique (bas) au cours d'une analyse.

Le début de l'analyse ($R = 12$) correspond à l'évaporation du Li naturel de surface. A partir de $t = 1350^\circ \text{C}$, le rapport isotopique diminue puis se stabilise à $R = 1,5$. Il restera ensuite constant jusqu'à la fin de l'analyse malgré les conditions de température très différentes et les grandes variations d'intensités ioniques correspondant à l'épuisement du ruban au cours de l'analyse. (voir également le tableau IV, page 34)

en annexe. Nous remarquerons simplement qu'à la précision des mesures (2%) on n'observe pas d'effet isotopique entre la diffusion de ^6Li et ^7Li .

III - RESULTATS EXPERIMENTAUX.

Nous avons employé cette méthode essentiellement pour des expériences à grande énergie. Les premières irradiations ont été effectuées au P.S. du C.E.R.N. en parasitant le faisceau éjecté de l' "expérience neutrino". Nous avons pu ainsi disposer de 2 irradiations longues (10 jours, 10^{17} protons) qui nous ont permis les premières mises au point de la méthode des filaments^(°). Par la suite, nous avons pu obtenir des irradiations en faisceau interne (19 GeV, durée d'irradiation variant entre 10 et 30 minutes). Une dizaine d'irradiations a été effectuée^(°°).

Enfin, dans le cadre d'une collaboration avec J. HUDIS du Brookhaven National Laboratory, nous avons pu disposer de deux irradiations de 2 heures en faisceau interne à l'A.G.S. (30 GeV, $2 \cdot 10^{12}$ protons toutes les 3 secondes).

Les rubans sont montés sur un porte-cible (Figure 9b) et sont entourés par des feuilles de garde du même métal destinées à compenser les pertes par recul. On sait que dans ces machines à focalisation forte, les oscillations des protons autour de leur trajectoire d'équilibre sont suffisamment faibles pour que ceux-ci puissent traverser la cible de très nombreuses fois pendant la durée utile du cycle d'accélération. Ce " facteur de traversées multiples " peut être estimé à 100 environ pour les épaisseurs de cible que nous avons utilisées.

(°) Nos remerciements vont à MM. PLUYM et VAN DER MEER qui ont manifesté beaucoup de compréhension pour nos problèmes.

(°°) Nous remercions MM. RUDSTAM et BRANDT du groupe de chimie nucléaire du C.E.R.N. qui ont bien voulu nous céder une partie de leur temps de faisceau interne.

Les mesures ont porté sur des cibles de Pt, Ta et Rh^(°).

Pour chaque ruban, on effectuait l'analyse à plusieurs températures différentes comme il a été expliqué. Les figures (11) et (12) et (13) montrent l'excellente reproductibilité des mesures. On peut estimer à 1 ou 2 % la précision ainsi obtenue dans la mesure des rapports isotopiques. Comme dans le cas de ¹²C, nous avons procédé à des mesures échelonnées dans le temps afin d'obtenir le rapport $\sigma^{7}\text{Be}/\sigma^{6}\text{Li}$.

1 - Résultats sur Rh

5 déterminations ont été effectuées provenant de 3 irradiations différentes. Le tableau V donne le résultat de chacune des déterminations.

TABLEAU V

n°	PK2	PLA	PK5	PE5	PE9
t	4 j	85j	110j	111j	114j
R	1,29	1,54	1,43	1,44	1,43

et la figure 11 montre la variation suivant

On obtient
$$R_0 = \frac{\sigma^{7}\text{Li}}{\sigma^{6}\text{Li}} = 1,28$$

$$R_{\infty} = \frac{\sigma^{7}\text{Li} + \sigma^{7}\text{Be}}{\sigma^{6}\text{Li}} = 1,50$$

2 - Résultats sur Ta

10 déterminations ont été effectuées provenant de 3 irradiations différentes.

(°) Nous remercions Melle PHILIPPE et Mme LE SCORNET qui ont effectué de très nombreuses mesures.

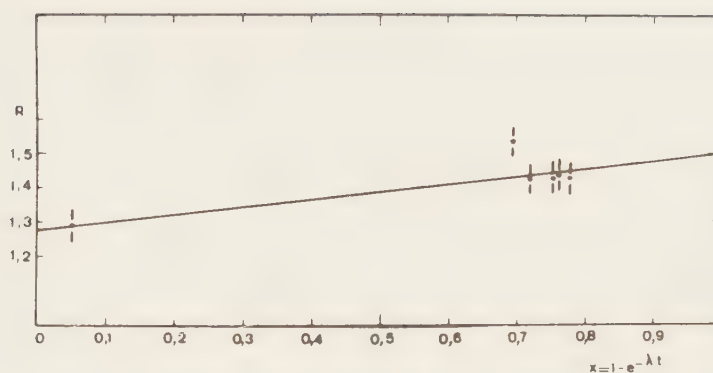


Fig. 11 : Variation, au cours du temps, du rapport $\frac{{}^7\text{Li}}{{}^6\text{Li}}$ mesuré.
Cas d'une cible de Rh. (voir tableau V)

(page 36)

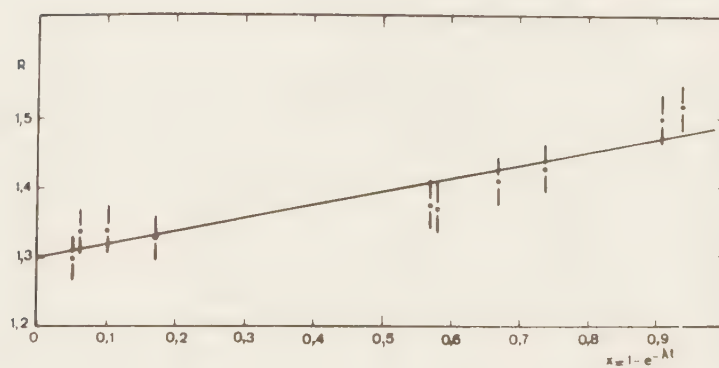


Fig. 12 : Variation, au cours du temps, du rapport $\frac{{}^7\text{Li}}{{}^6\text{Li}}$ mesuré.
Cas d'une cible de Ta. (voir tableau VI)

(page 37)

3 - Résultats sur Pt

Le tableau VII rapporte les résultats de 9 analyses effectuées à l'aide de 3 irradiations différentes.

TABLEAU VII

n°	PG14	AB1	PG11	AB2	PJA	PG12	PG13	PJC	PJ8
t	7j	9j	11j	12j	17j	76j	77j	100j	106j
R	1,4	1,40	1,44	1,40	1;39	1,50	1,50	1,45	1,49

La variation au cours du temps est donnée par la figure 13.

La méthode des moindres carrés donne pour la droite

$$y = 1,40 + 0,12 X$$

$$\text{On a donc } \frac{\sigma^7 \text{Li}}{\sigma^6 \text{Li}} = 1,40 \quad \frac{\sigma^7 \text{Be}}{\sigma^6 \text{Li}} = 0,12$$

Tous ces résultats sont rassemblés dans le tableau VIII

TABLEAU VIII

cibles	$R_0 = \frac{\sigma^7 \text{Li}}{\sigma^6 \text{Li}}$	R_∞	$\frac{\sigma^7 \text{Be}}{\sigma^6 \text{Li}}$	$\sigma^7 \text{Be}^{(°)}$ mb	$\sigma^7 \text{Li}$ mb+30%	$\sigma^6 \text{Li}$ mb+30%	$\sigma^6 \text{He}$
Rh	1,29 ± 0,02	1,50	0,22	18,2	106	82	
Ta	1,30	1,51	0,20	19,9	130	100	≥ 15
Pt	1,40	1,52	0,12	21,6	250	180	

Ensemble des résultats expérimentaux sur ^6Li , ^7Li à 30GeV

4 - Erreurs sur les sections efficaces absolues.

Si nous obtenons une grande précision dans la mesure des sections efficaces relatives $\frac{\sigma^7 \text{Li}}{\sigma^6 \text{Li}}$, il n'en va pas de même pour les sections efficaces absolues.

(°) J. HUDIS, Communication personnelle.

TABLEAU VI

n°	PF12	PF8	AA1	AA2	PF11	PF9	NAA	AA4	AA5	PF10
t	4j	5j	8j	13j	65j	66j	84j	103j	183j	214j
R	1,30	1,34	1,34	1,33	1,375	1,37	1,41	143	1,50	1,52

L'évolution au cours du temps est montrée (figure 12) et la méthode des moindres carrés donne l'équation de la droite

$$y = 1,30_8 + 0,20_0 X$$

$$\text{d'où l'on déduit } R_o = \frac{{}^7\text{Li}}{{}_6\text{Li}} = 1,30 \quad \text{et} \quad \frac{{}^7\text{Be}}{{}_6\text{Li}} = 0,20$$

En outre, l'irradiation en faisceau externe, effectuée avec une cible plus épaisse, donne une valeur R_∞ beaucoup plus faible ($R_\infty = 1,35$)

Ceci peut s'interpréter de la façon suivante : en faisceau interne, les cibles subissent un échauffement notable (plusieurs centaines de degrés) de sorte que l' He^6 formé dans la réaction diffuse à travers la cible mince et se perd. En faisceau externe, au contraire, il n'y a pas de traversées multiples, le refroidissement est meilleur (cible à l'air libre) et la cible aura une température beaucoup moins élevée. De plus, il s'agissait d'une cible épaisse. On peut donc penser que l' He^6 ne pourra diffuser avant d'avoir subi la décroissance ${}^6\text{He} \xrightarrow{\beta^-} {}^6\text{Li}$ (0,8 seconde)

On mesure donc

$$R_\infty = \frac{{}^7\text{Li} + {}^7\text{Be}}{{}_6\text{Li} + {}^6\text{He}} = 1,35$$

Bien entendu, il est possible que seule une partie de l' He^6 diffuse. Nous avons néanmoins estimé ainsi une limite inférieure de la production d' He^6 . La valeur obtenue ($\sigma^6\text{He} \gg 15 \text{ mb}$ est en accord avec la valeur $\sigma = 29 \text{ mb}$ obtenue à 3 GeV dans Pb par ROWLAND et WOLFGANG⁽³¹⁾).

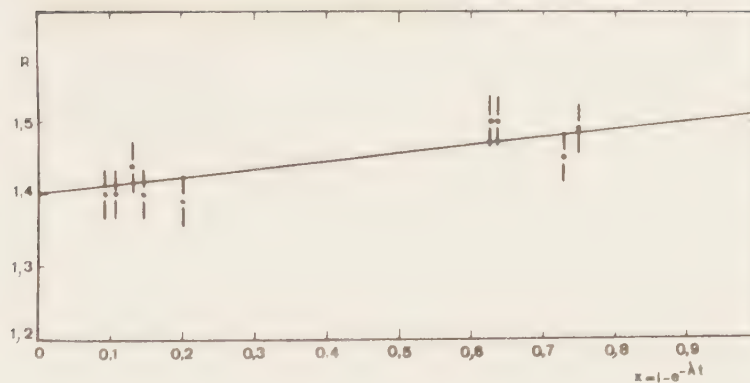


Fig. 13 : Variation, au cours du temps, du rapport $\frac{{}^7\text{Li}}{{}^6\text{Li}}$ mesuré.
Cas d'une cible de Pt. (voir tableau VII)

(page 38)

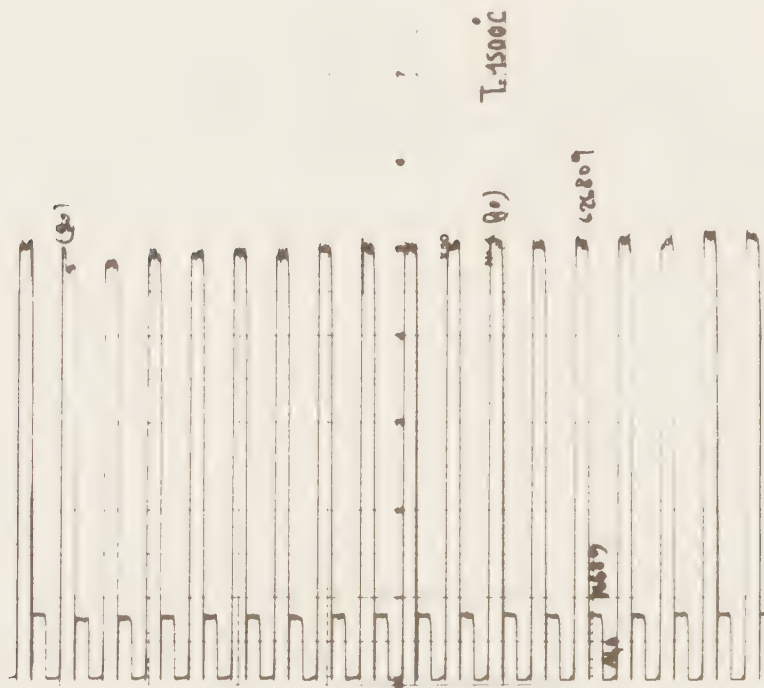


Fig. 14 : Spectre de masse montrant le rapport ${}^{23}\text{Na} / {}^{22}\text{Na}$ à partir
d'une cible de platine irradiée à 30 GeV.

(page 39)

Ceci est dû à la faiblesse du rapport $\frac{\sigma^7\text{Be}}{\sigma^6\text{Li}}$ dans les cibles lourdes qui contraste avec le cas de ^{12}C .

Reprenant le calcul fait au chapitre précédent, on peut écrire

$$\begin{aligned} \frac{d \sigma^6\text{Li}}{\sigma^6\text{Li}} &= \frac{d \sigma^7\text{Be}}{\sigma^7\text{Be}} + \frac{d R}{R} \frac{R_\infty + R_0}{R_\infty - R_0} \\ \frac{d \sigma^7\text{Li}}{\sigma^7\text{Li}} &= \frac{d \sigma^7\text{Be}}{\sigma^7\text{Be}} + \frac{2 d R}{R} \frac{R_\infty}{R_\infty - R_0} \end{aligned}$$

Pour Ta, par exemple, on a

$$\begin{aligned} \frac{R_\infty + R_0}{R - R_0} &= \frac{2,8}{0,2} = 14 \\ \frac{R}{R_\infty - R_0} &= \frac{1,5}{0,2} = 7,5 \end{aligned}$$

Indépendamment de l'erreur sur ^7Be , l'erreur introduite par la méthode est donc de l'ordre de 28 à 30% si $\Delta R/R = 2\%$.

5 - Résultats sur ^{23}Na et ^{22}Na dans Pt.

Si l'essentiel de notre étude a porté sur les fragments ^6Li et ^7Li , la mesure des sections efficaces de ^{23}Na présente également beaucoup d'intérêt (voir chapitre V). L'expérience est beaucoup plus difficile que dans le cas du Li car il est très difficile de préparer des cibles ayant la pureté requise. Nous avons pu cependant au laboratoire purifier^(°) des rubans de platine jusqu'à obtenir une intensité résiduelle de l'ordre de 50 c/s ce qui correspond à une pureté de l'ordre de $2 \cdot 10^{-12}$ atome par atome.

Après irradiation, on obtenait une intensité de ^{23}Na considérablement supérieure (10.000 à 50.000 coups/seconde).

Le rapport isotopique $\frac{\sigma^{23}\text{Na}}{\sigma^{22}\text{Na}} = 8,3$ (figure 14)

On peut comparer ces résultats à ceux obtenus par HUDIS et SCHAEFFER⁽²¹⁾ sur les fragments ^{20}Ne , ^{21}Ne , ^{22}Ne par spectrométrie de masse et ^{22}Na et ^{24}Na par radiochimie avec une cible d'Au

(°) Grâce à l'ingéniosité et à la patience de C. PHILIPPE et G. LESCORNET.

à 30 GeV. On obtient :

fragments	^{20}Ne	^{21}Ne	^{22}Ne	^{22}Na	^{23}Na	^{24}Na
section efficace mb	18	16	13	2	16	10

IV - CONCLUSION SUR CETTE METHODE

1 - Sensibilité

Connaissant les sections efficaces, on peut déterminer à postériori le nombre d'atomes qui nous a été nécessaire pour effectuer une analyse isotopique dans de bonnes conditions (précision de 2 % sur le rapport isotopique).

Au cours d'une irradiation interne de 15 minutes au P.S. du C.E.R.N., on peut estimer à $2 \cdot 10^{15}$ le nombre total de protons traversant chaque ruban et à 100 le facteur de traversées multiples. Pour une section efficace de 180 mb, on calcule ainsi que le nombre d'atomes est d'environ $7 \cdot 10^{10}$.

Si cette sensibilité représente effectivement un progrès par rapport à la méthode d'évaporation, on peut remarquer que la sensibilité intrinsèque de la méthode de comptage est bien plus grande : le bruit de fond étant de 20 coups par seconde, on peut distinguer un pic de 100 coups par seconde ce qui conduit à compter en 30 minutes sur chaque pic environ $5 \cdot 10^4$ ions. Avec un rendement d'ionisation de 1 % ceci correspond à $5 \cdot 10^6$ atomes présents dans la cible.

Aussi bien, c'est la nécessité d'être au-dessus du fond de Li naturel qui limite la sensibilité utile de la méthode à une quantité de l'ordre 10^{10} atomes (10^{-13} g de ^6Li).

La grande sensibilité intrinsèque de la méthode de comptage n'est finalement pleinement utilisée que dans la méthode d'analyse directe qui sera décrite au chapitre suivant.

2 - Domaine d'application.

Il faut pouvoir obtenir les métaux en feuilles minces et les souder électriquement sans trop de difficultés. Ceci est le cas des métaux que nous avons utilisés mais aussi de V, Nb, Re, etc...

Le procédé de séparation entre la désorption de la surface et la diffusion de l'intérieur impose également certaines limitations. C'est ainsi que le graphite, qui présente une diffusivité trop élevée ne peut être traité commodément par cette méthode. Il sera traité, soit par évaporation séparée soit par la méthode d'analyse par spectrométrie en ligne que nous allons décrire maintenant.

CHAPITRE IV

ANALYSE DIRECTE PAR SPECTROMETRIE DE MASSE EN LIGNE

I - GENERALITES ET DESCRIPTION DE PRINCIPE

Dans les méthodes que nous venons de décrire, un certain délai s'écoule toujours entre l'irradiation et l'analyse. Ceci n'est pas gênant pour les isotopes stables ou de longues périodes et offre même certains avantages (possibilité d'opérer à l'aide d'accélérateurs lointains, de mesurer des sections efficaces cumulatives, de compenser par des irradiations longues la faiblesse de certaines sections efficaces, etc...).

Cependant, les techniques dont nous disposons maintenant permettent d'envisager la suppression de ce délai et d'analyser les produits au fur et à mesure de leur formation en plaçant un spectromètre de masse directement dans le faisceau extrait d'un accélérateur de particules.

L'avantage de cette façon de procéder est d'étendre le domaine d'application de la spectrométrie de masse aux isotopes de périodes très courtes ($T \ll 1$ seconde). On peut ainsi mesurer, de façon précise, des sections efficaces de formations indépendantes (non cumulatives) d'isotopes situés loin de la stabilité et impossibles à obtenir par radiochimie, données importantes pour l'étude de la fragmentation. Il est également possible de caractériser de cette façon un nombre important d'isotopes nouveaux.

Même pour les isotopes stables, la méthode directe offre l'avantage d'une mesure indépendante de la contamination. Il s'agit, dans ce domaine, du stade ultime de l'évolution de nos techniques visant à supprimer toute manipulation de l'échantillon.

En contrepartie de ces avantages, cette méthode exige d'avoir un accès direct au faisceau extrait d'un accélérateur et c'est pourquoi

nous ne présentons, ci-dessous, que les résultats qu'il nous a été possible d'obtenir à 150 MeV au synchrocyclotron d'Orsay. Nous pensons cependant que la méthode elle-même constitue un acquis et que son utilisation auprès d'un accélérateur de plus grande énergie permettra, ultérieurement, d'obtenir de nombreuses données nouvelles sur la fragmentation.

Description de principe de l'expérience

Une cible constituée de plusieurs plaquettes de graphite portées à une température de l'ordre de 1500° C est bombardée par un faisceau de protons de 150 MeV. Par spallation du carbone, des fragments de $Z < 6$ (B, Be, Li, He) sont produits et amenés à l'arrêt dans la cible en un temps très court (10^{-11} sec). Par diffusion thermique, ces éléments sortent de la cible et seuls les atomes de Li peuvent être ionisés par émission thermoionique à la surface du carbone.

Les ions Li^+ , à l'arrêt, sont alors accélérés par une différence de potentiel de 3000 volts, analysés en masse par un secteur magnétique et détectés par un multiplicateur d'électrons exactement comme dans un spectromètre de masse usuel.

L'identification des produits de réaction se compare très favorablement à ce qu'il est possible d'obtenir par les techniques utilisant les compteurs (chapitre I) : Z est déterminé sans ambiguïté par la très forte sélectivité de l'émission thermoionique pour les alcalins, et la masse par l'analyse magnétique d'ions d'énergie bien définie.

La réalisation d'une telle expérience exigeait finalement deux conditions :

- sensibilité : les méthodes de comptage individuel qui permettent effectivement de compter les ions au fur et à mesure de leur formation trouvent ici leur emploi optimum ;

- vitesse de diffusion : pour mettre en évidence des nuclides de courtes périodes ($T < 1$ sec), un temps très court doit s'écouler entre la formation du noyau et son arrivée au collecteur. Les temps d'arrêt (10^{-11} sec) et de transit ($\sim 10^{-6}$ sec) sont négligeables par rapport au temps que met l'atome formé à diffuser hors de la cible. Nous nous sommes servis des remarquables propriétés de diffusivité du graphite, propriétés que nous avons d'ailleurs mises en évidence à cette occasion.

Nous allons décrire maintenant la réalisation effective de l'expérience, les résultats obtenus, et nous discuterons enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, d'autres applications possibles à la physique nucléaire.

II - REALISATION EFFECTIVE DE L'EXPERIENCE

a) Description du spectromètre utilisé^(°)

La figure 15 montre une vue générale du spectromètre de masse. On remarque les fenêtres en aluminium mince destinées à permettre le passage du faisceau de protons.

Les principaux problèmes technologiques résultent de la nécessité de maintenir la cible à température élevée dans un flux intense de protons.

La construction de la source tient compte de cette exigence (fig. 16). La cible chauffée par effet Joule est entourée d'un écran de tantale destiné à diminuer les pertes par rayonnement. Les isolants, également protégés par des écrans thermiques, ont été placés le plus loin possible de la zone chauffée et irradiée. On a employé l'alumine ou mieux l'oxyde de beryllium, ce dernier matériau présentant l'intéressante propriété d'être un bon isolant électrique en même temps qu'un bon conducteur de la chaleur.

(°) Cet appareil a été construit au Laboratoire par MM. R. FERGEAU et M. SALOME qui ont eu à résoudre, à cette occasion, de nombreux problèmes technologiques. Les sources d'ions ont été construites par MM. ALORENT et BIDERMAN.

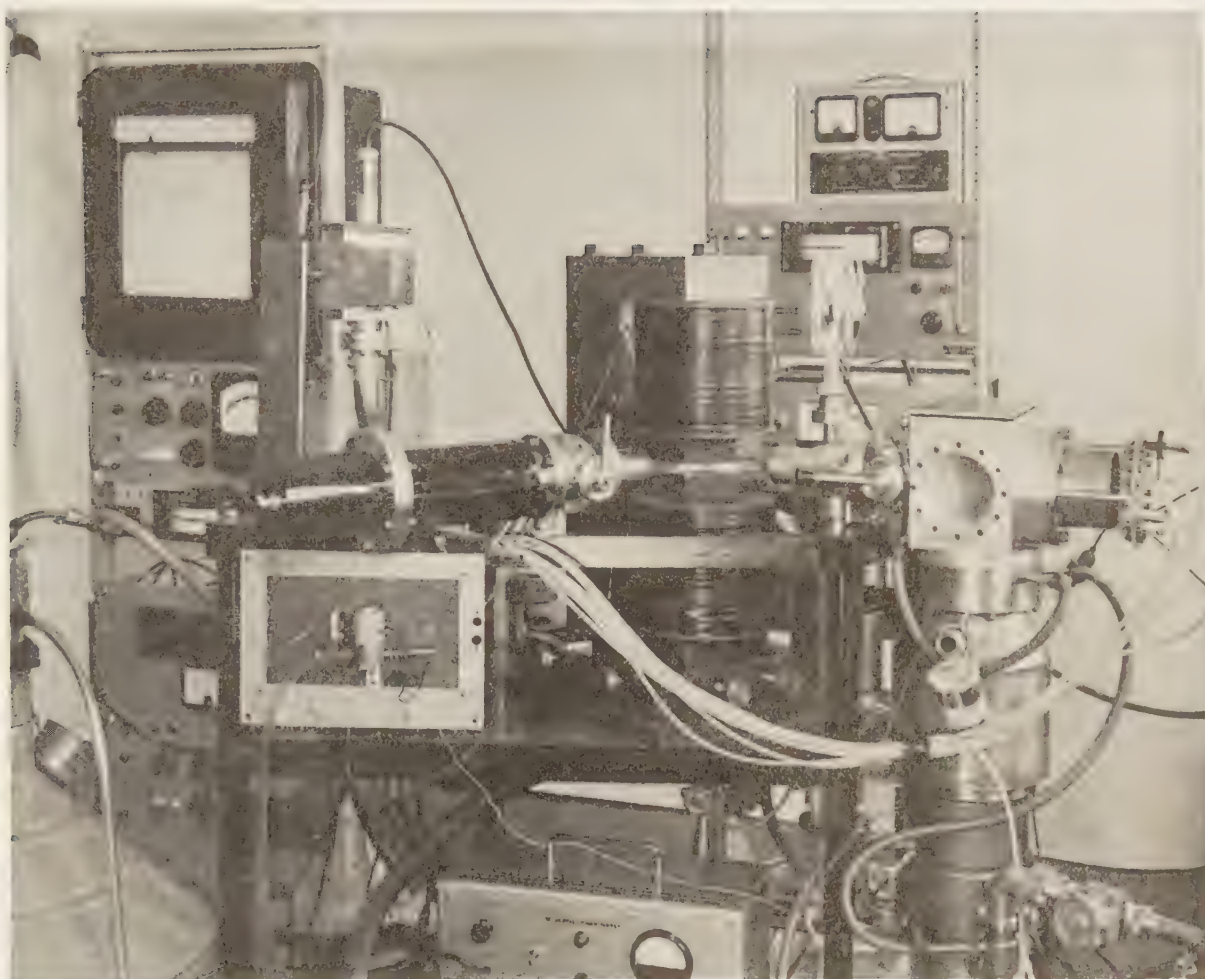


Fig. 15 : Vue générale du spectromètre de masse destiné à l'analyse en ligne de produits de réactions nucléaires.

Le dégazage dans l'enceinte de source doit être réduit au minimum malgré la puissance élevée (100 ou 200 watts) dissipée dans un volume restreint. Aussi les brides sont-elles refroidies par une circulation d'eau et deux pompes à diffusion d'huile d'un débit de 600 l/s et 80 l/s, munies de baffles et de pièges à azote liquide permettant de maintenir une pression de quelques 10^{-7} mm de Hg.

b) Cibles

La première cible était constituée de plaquettes de graphite de 2/10 de mm, séparées par des isolants en nitrure de bore. Elle était chauffée directement par passage du courant dans les plaquettes.

Par la suite, nous avons jugé préférable d'employer un four constitué d'une feuille de tantale mince (10 à 15 microns), roulée et soudée sur les barreaux d'amenée du courant de chauffage^(°). Cette disposition permet de prendre comme cible des matériaux non conducteurs (bore par exemple) ou simplement d'utiliser des feuilles de C très minces (2/100 mm) dans le but d'obtenir une diffusion plus rapide.

c) Disposition dans le faisceau de l'accélérateur

L'appareil, de taille modeste, pèse moins de 200 kg et sa mise au point étant effectuée au Laboratoire, on peut le mettre en place dans le faisceau de l'accélérateur quelques heures seulement avant l'expérience.

Nous nous sommes placés dans le faisceau extrait du synchrocyclotron du Laboratoire, à 2 mètres environ de la sortie des lentilles quadrupolaires de focalisation. A cet endroit, le faisceau de protons présente une section elliptique de grand axe 20 mm et de petit axe de 12 mm.

L'intensité totale extraite, mesurée à l'aide d'un cylindre de Faraday situé en aval, est de l'ordre de $5 \cdot 10^{11}$ protons par seconde.

(°) M. Jacques CHAUMONT a résolu les délicats problèmes posés par la confection et la "tenue" de ces sources ainsi que de nombreuses questions (d'électronique en particulier) liées à ces expériences. Je le remercie très vivement de sa contribution.

Cependant, l'intensité interceptée par notre cible de $10 \times 6 \text{ mm}^2$ ne dépasse pas $2 \cdot 10^{11}$ ainsi que nous nous en sommes assurés en irradiant une feuille d'aluminium de même dimension.

d) Rapport entre signal et bruit de fond dans cette expérience

1°) Signal obtenu : on comptait environ 15000 ^6Li par seconde au collecteur pour une intensité de protons de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{11}/\text{sec}$. Connaissant la section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(\text{P}, \text{X}) ^6\text{Li}$ soit 10 mb (chapitre II), on estime facilement le rendement global à 10^{-3} environ.

Cette valeur de rendement est limitée essentiellement par le mauvais rendement d'ionisation du Li sur C. On pourrait probablement l'augmenter en employant pour le chauffage une feuille de rhénium mince. Il s'agit malheureusement d'un métal rare qu'il est difficile de se procurer et nous n'avons pu encore essayer cette solution.

2°) Bruit de fond :

- Signal résiduel de Li naturel : S'il subsiste un signal résiduel de Li aux masses 6 et 7, il faut signaler que, grâce au choix des matériaux constituant la cible et à un chauffage prolongé (plusieurs semaines) à haute température avant l'expérience, ce signal résiduel peut être ramené à une valeur faible (30 % du signal total à la masse 7).

Dans ces conditions, la différence des courants d'ions avec et sans irradiation permet de mesurer dans de bonnes conditions le rapport $\frac{\sigma_{^7\text{Li}}}{\sigma_{^6\text{Li}}}$ sans contamination. Il s'agit là d'un avantage unique dans la mesure des isotopes stables. Dès la première expérience, nous avons pu mesurer ainsi $\sigma_{^7\text{Li}} / \sigma_{^6\text{Li}} = 0,73 \pm 0,05$, confirmant ainsi la valeur trouvée par évaporation séparée.

- Bruit de fond : Le bruit de fond dû au rebondissement d'ions parasites est ici un peu plus fort que dans les spectromètres ordinaires et augmente fortement avec la puissance de chauffage. Il atteint 25 c/s pour 120 watts.

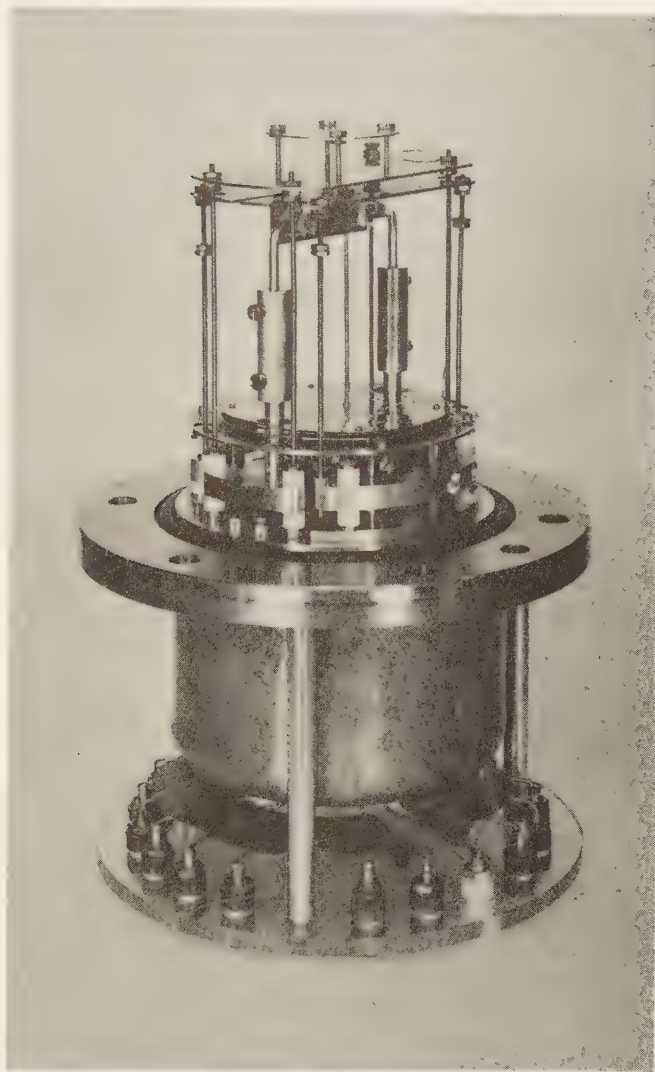


Fig. 16 : Source d'ions utilisée pour le spectromètre en ligne.

(page 44)

On a représenté en haut à droite la cible de graphite chauffée par effet Joule.

(page 45)

$$\begin{aligned} \text{sur pic :} & \quad n N + n \gamma \quad \pm \quad \sqrt{n N + n \gamma} \\ \text{sur fond :} & \quad n \gamma \quad \pm \quad \sqrt{n \gamma} \end{aligned}$$

La partie significative du bruit n'est pas son niveau moyen constant $n \gamma$ mais sa fluctuation $\sqrt{n \gamma}$. Le rapport signal / bruit est donc :

$$S / B = \frac{n N \pm \sqrt{n N + n \gamma}}{\sqrt{n \gamma}}$$

et l'on voit qu'il s'améliore avec $\sqrt{n}$. Bien que la théorie précédente soit très élémentaire, l'expérience confirme ces prévisions.

Nous avons, pour appliquer ces considérations, utilisé successivement deux montages que nous allons décrire.

1°) Balayage répétitif magnétique^(°) : un schéma fonctionnel du dispositif est donné figure 17. On réalise une modulation triangulaire de la tension d'alimentation des bobines de l'électroaimant de façon à balayer le champ entre deux limites B_1 et B_2 correspondant au spectre de masse que l'on désire explorer. "L'avance-adresse" du sélecteur multi-échelle Intertechnique est déclenchée par un circuit de Schmitt lorsque la tension atteint une valeur fixée. La fréquence de balayage est de l'ordre de 1 cycle en 10 s.

Les figures 18 et 19 montrent des exemples de spectres relevés dans ces conditions. La "traîne" dissymétrique présentée par les pics de ^8Li est liée au sens d'écoulement du temps et non au sens de balayage du champ magnétique. Elle s'interprète de la façon suivante :

Un ion ^8Li , arrivant sur la première dynode, va s'adsorber et y subir la décroissance :



(°) Je remercie M. AMAREL qui a réalisé très rapidement au Laboratoire cette version simplifiée du dispositif de BARTON.

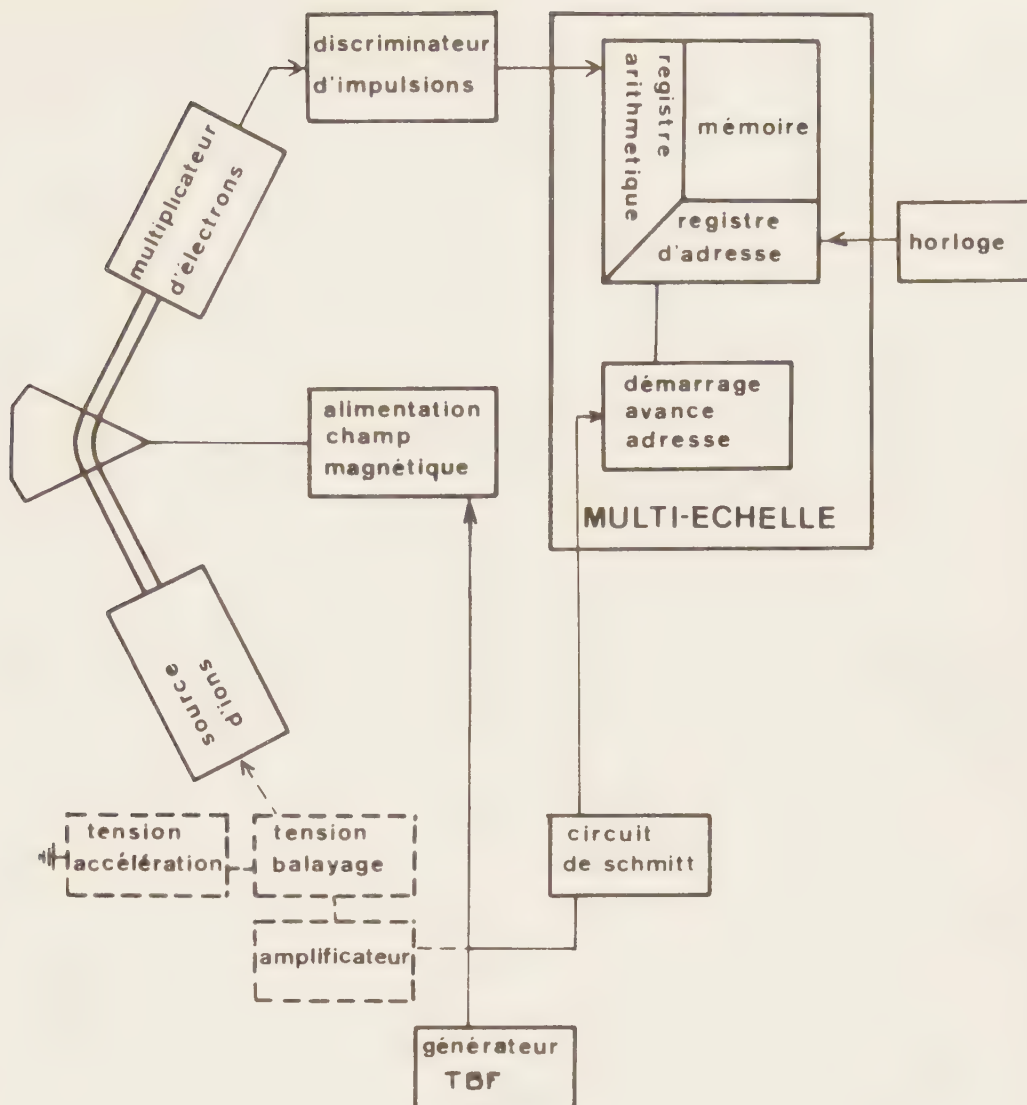


Fig. 17 : Schéma fonctionnel du système de balayage à accumulation utilisant un sélecteur multi-échelle.

(page 48)

Le générateur de signaux triangulaires permet de moduler soit le champ magnétique, soit la haute tension d'accélération des ions. Un circuit de Schmitt permet de déclencher de façon synchrone avec cette modulation l' "avance adresse" d'un sélecteur multi-échelle Intertechnique.

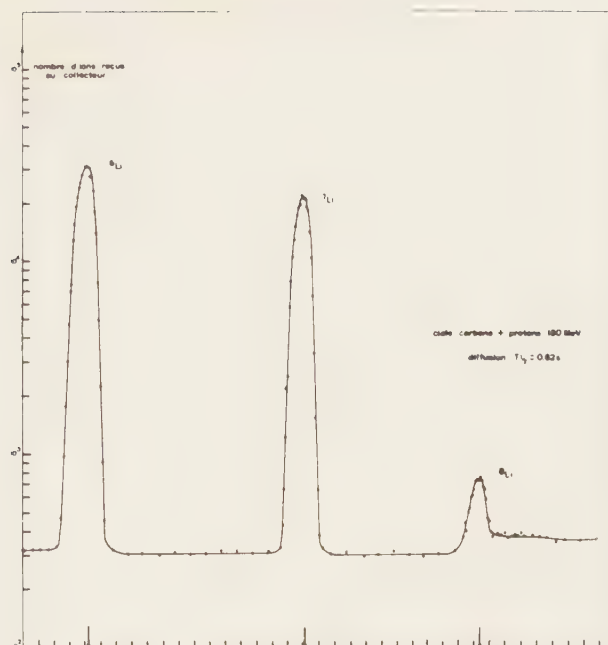


Fig. 18 : Spectre de ${}^6\text{Li}$ ${}^7\text{Li}$ ${}^8\text{Li}$ formés au cours de la réaction ${}^{12}\text{C} + \text{P}_{150 \text{ MeV}}$ obtenu en employant le balayage répétitif magnétique.

(page 48)

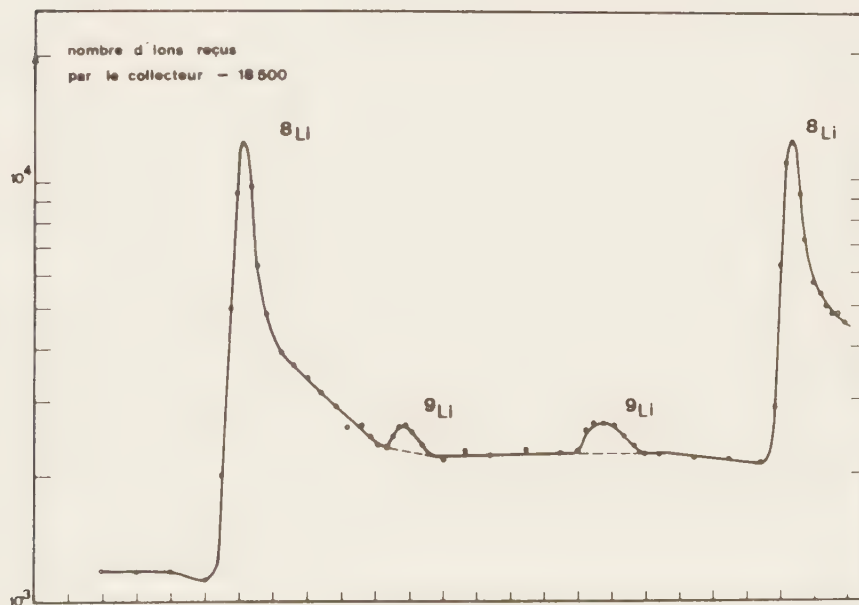


Fig. 19 : ${}^8\text{Li}$ et ${}^9\text{Li}$ obtenus dans les mêmes conditions.

On remarquera la "traîne" du ${}^8\text{Li}$, due à la décroissance $\propto$ des ${}^8\text{Li}$ adsorbés sur la dynode qui masque partiellement le ${}^9\text{Li}$.

Le multiplicateur étant sensible aux particules α , les impulsions comptées correspondront non seulement à l'arrivée des ions mais à leur décroissance radioactive ultérieure. Le même effet perturbe les mesures de ^9Li .

En conclusion, bien que ce système nous ait permis d'avoir une première indication expérimentale de la section efficace de la réaction $^{12}\text{C} (p, 4p) ^9\text{Li}$, il ne nous a pas permis d'effectuer une mesure précise.

Nous avons remédié à ces inconvénients en employant un procédé différent que nous allons décrire.

2°) Balayage répétitif rapide (électrique) : on effectue un balayage à fréquence plus élevée : 100 cycles/s au lieu de 0,1 cycle/s. Comme on ne peut facilement cyler le champ magnétique à ce rythme, il faut nécessairement pulser la tension d'accélération des ions.

Toutefois comme l'excursion de tension ΔV pour passer de ^6Li à ^9Li est très grande (on passe de 2000 à 3000 volts), les conditions d'extraction seraient très différentes et l'on introduirait ainsi un facteur de discrimination isotopique.

Afin d'éviter cet inconvénient, on ne balaye la haute tension qu'au voisinage d'un seul pic. Pour étudier un autre pic, on change le champ magnétique de façon à opérer toujours dans les mêmes conditions de tension d'accélération. Bien entendu, pour comparer les intensités obtenues pour chacun des isotopes, il faut mesurer soigneusement le temps et les flux de protons relatifs à chaque masse.

Montrons par un calcul simple comment un tel balayage rapide évite les inconvénients dûs à la décroissance α .

Soit le cas idéal où des impulsions brèves de $\underline{a}$ atomes de ^8Li arrivent au collecteur à intervalles réguliers T .

Au bout du temps t correspondant à un grand nombre de passages, le nombre N de ^8Li présents sur le collecteur sera :

$$N = a \left[e^{-\lambda t} + e^{-\lambda(t+T)} + e^{-\lambda(t+2T)} + \dots \right]$$

Soit :

$$N = \frac{a e^{-\lambda t}}{1 - e^{-\lambda T}}$$

et le nombre correspondant de désintégrations comptées sera par seconde :

$$\frac{\lambda a e^{-\lambda t}}{1 - e^{-\lambda T}} \quad (^\circ)$$

On voit que la variation dans le temps de l'intensité comptée est faible. Comme $T_{g\text{Li}} = 840\text{ms}$, si $T = 10\text{ms}$, elle restera constante à 1 % près et se présentera donc pratiquement comme un fond continu supplémentaire.

Cette situation contraste avec le cas précédent (balayage magnétique lent) où le ^8Li déposé lors d'un passage décroît entièrement avant le passage suivant ce qui donne une corrélation dans le temps fortement atténuée ici. L'expérience (fig. 20) confirme tout à fait cette prévision.

Cette méthode présente en outre deux autres avantages :

- le balayage linéaire en temps permet un meilleur taux d'utilisation en autorisant le groupage d'un plus grand nombre de canaux sur chaque pic et on atteint au total un cycle utile de 8 % au lieu de 2 % dans la méthode précédente.
- les statistiques, déjà améliorées de cette façon peuvent également être mieux réparties. On peut, par exemple, cycler 100 fois plus de temps autour de ^8Li que de ^6Li .

(°) Note : Le nombre d' α comptés pendant un cycle de 0 à T $\int_0^T \frac{\lambda a e^{-\lambda t}}{1 - e^{-\lambda T}} dt = a$ est égal au nombre de ^8Li arrivant pendant ce temps sur la dynode, ce qui est normal une fois l'équilibre atteint.

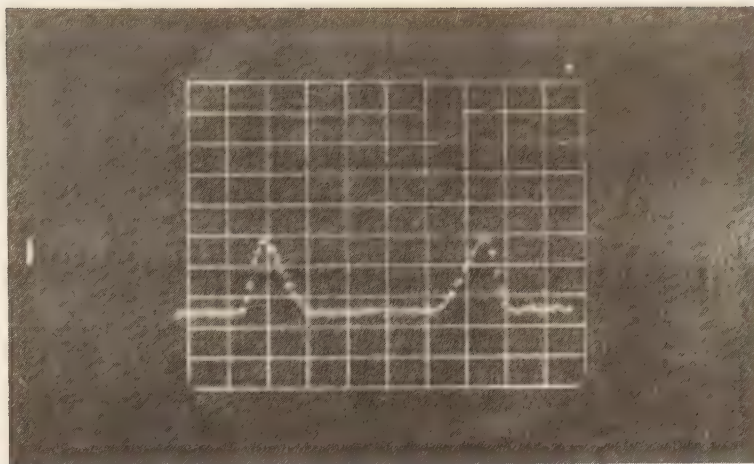


Fig. 20 : Spectre de ^8Li obtenu à l'aide du balayage rapide électrique.

Les 2 pics correspondent à l' "aller" et au "retour" du balayage de la haute tension. On remarque l'absence de toute traîne (comparer à la figure 19).

f) Mesure du temps de diffusion

Cette mesure est indispensable pour corriger les résultats obtenus de l'influence des pertes par décroissance radioactive (voir appendice). On procède de la façon suivante :

le spectromètre étant réglé sur ^6Li , la cible est irradiée pendant un temps de l'ordre de grandeur du temps de diffusion puis le faisceau du synchrocyclotron est bloqué. A la fin de l'irradiation, on déclenche le début du comptage à l'aide d'un sélecteur multi-échelle. Le cycle est automatique et on le répète un nombre de fois suffisant pour avoir des statistiques convenables.

On obtient la courbe de diffusion figure 21. En portant cette courbe sur papier semi-logarithmique, on observe l'existence de deux pentes comme le laisse prévoir l'équation (1). La pente du mode principal permet de calculer le coefficient de diffusion et les temps caractéristiques correspondants. Nous avons pu obtenir des temps de diffusion de l'ordre de 0,2 seconde, suffisants pour mesurer ^9Li (0,17 seconde).

III - RESULTATS OBTENUS

La figure 22 montre un spectre obtenu dès la première expérience (décembre 64). Ce spectre ayant été obtenu en comptant pendant 100 secondes sur chaque position du champ magnétique, la valeur obtenue pour ^8Li est erronée. Par contre, la mesure sur ^6Li et ^7Li est correcte.

Pour ^8Li et ^9Li , les figures 20 et 23 montrent les pics obtenus sur l'oscilloscope. La figure 24 montre le pic de ^9Li obtenu après groupage des canaux et soustraction du bruit de fond. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau IX.

$\sigma^7\text{Li} / \sigma^6\text{Li}$		$\sigma^6\text{Li} / \sigma^8\text{Li}$	
		brut	corrigé
$0,70 \pm 0,05$		$56,5 \pm 2,5$	$45,5 \pm 4$
$\sigma^6\text{Li} / \sigma^9\text{Li}$		$\sigma^8\text{Li} / \sigma^9\text{Li}$	
brut	corrigé	brut	corrigé
1000 ± 150	462 ± 75	$17,4 \pm 2,3$	$10,5 \pm 1,5$

TABLEAU IX

Ensemble des résultats expérimentaux $^{12}\text{C} + \text{p} (150 \text{ MeV}) \rightarrow \text{Li}^{6,7,8,9}$

Les incertitudes sur les rapports bruts résultent de la fluctuation statistique prise égale à $\sqrt{N}$. Les écarts réellement obtenus entre deux séries de mesures indépendantes sont d'ailleurs toujours compris dans cet intervalle.

Pour tenir compte des pertes dues à la diffusion, on a déterminé le temps de diffusion de ^6Li :

$$T_d = 300 \pm 20 \text{ ms}$$

On a mesuré dans les mêmes conditions la diffusion de ^7Li . Dans la limite de la précision des mesures, il semble que $D^6_{\text{Li}} = D^7_{\text{Li}}$ et nous avons admis qu'il en était de même pour D^8_{Li} et D^9_{Li} .

Le principe de la correction des pertes au cours de la diffusion est exposé en annexe II. On peut écrire :

$$R_{6/8} = R_{\text{mesuré}} \gamma_{6/8} = R_{\text{mesuré}} \frac{\text{th} U_8}{U_8}$$

avec :

$$U_8 = \frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{T_d}{T^8_{\text{Li}}}}$$

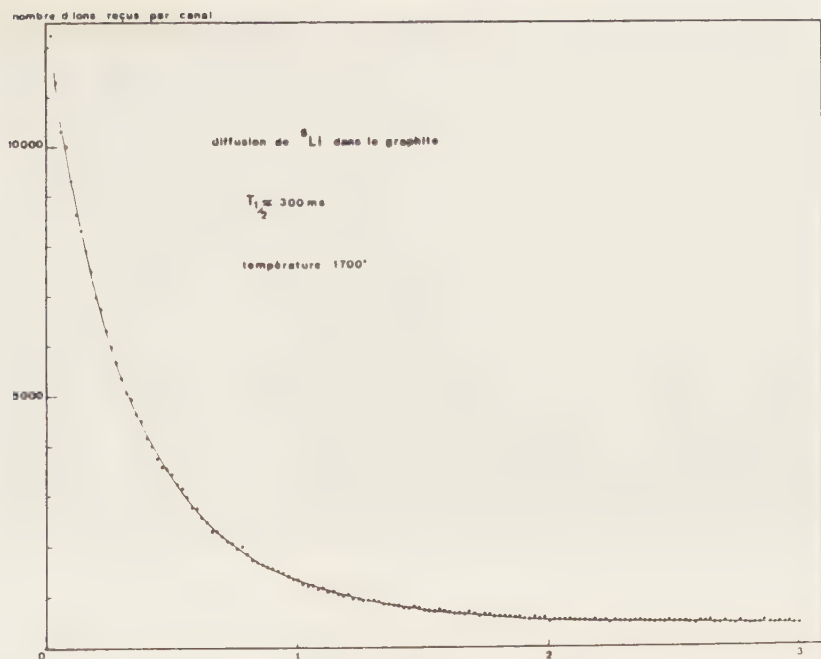


Fig. 21 : Courbe de diffusion du ^6Li obtenue en irradiant la cible en régime pulsé et en enregistrant la dépendance de temps du courant ionique à l'aide d'un sélecteur multi-échelle.

(page 51)

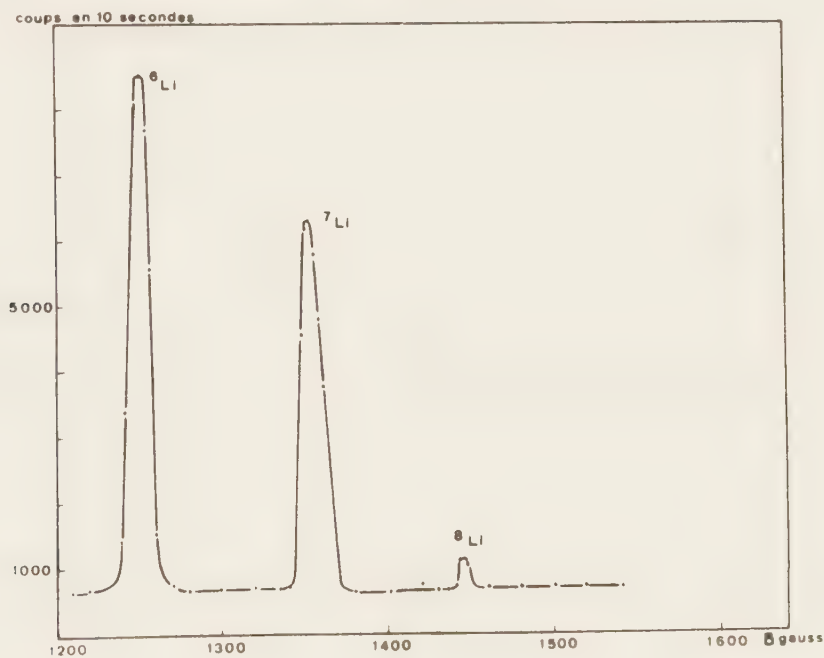


Fig. 22 : Spectre de ^6Li ^7Li ^8Li obtenu au cours d'une première expérience. Ce spectre était tracé, point par point, en comptant pendant 100 secondes sur chaque position du champ magnétique. La valeur obtenue pour ^8Li dans ces conditions est erronée par excès.

(page 51)

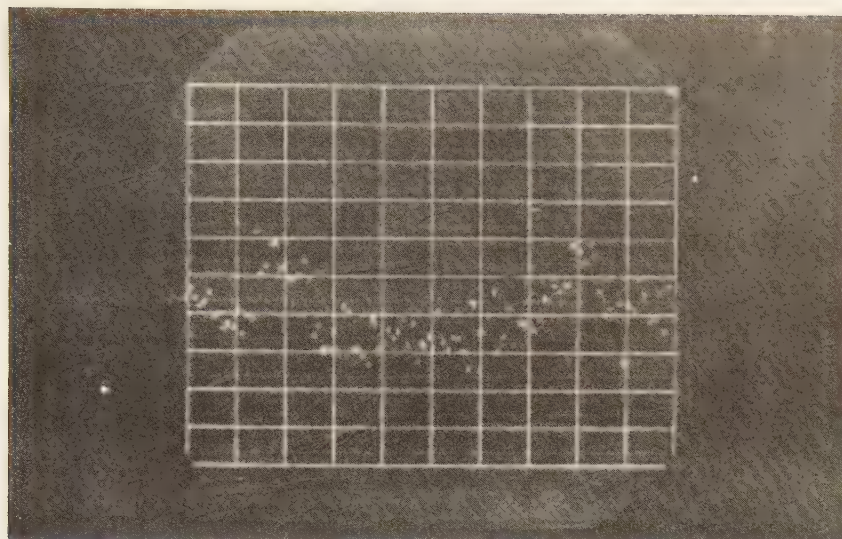


Fig. 23 : Spectre de ^9Li obtenu sur l'oscilloscope par le balayage électrique rapide.

(page 51)

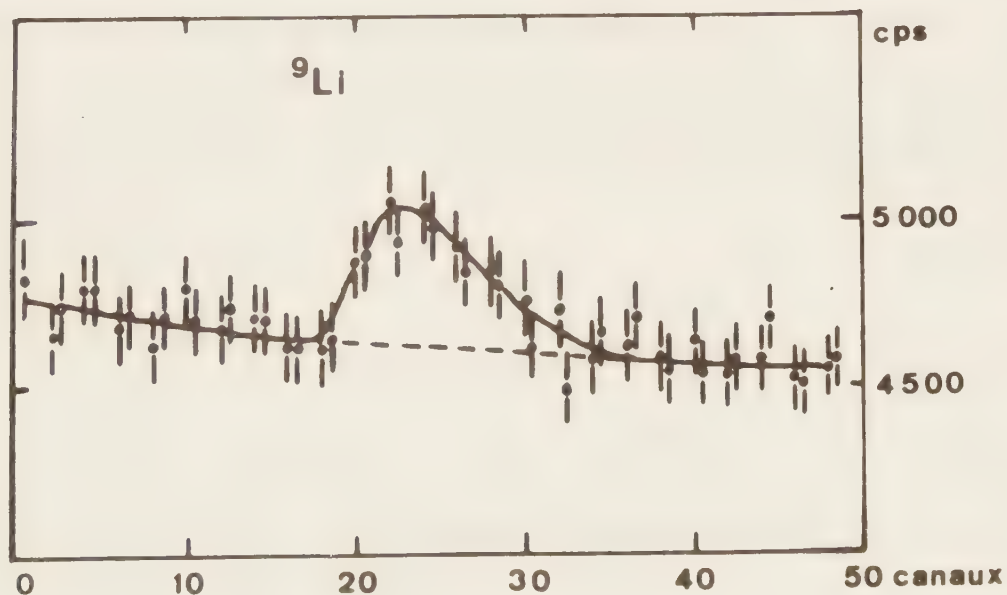


Fig. 24 : Tracé du spectre précédent après groupage des canaux et soustraction du bruit de fond. Les barres d'erreurs donnent la fluctuation statistique prise égale à $\sqrt{N}$.

(page 51)

On a superposé ici les 2 pics aller et retour.

On a ici :

$$U_8 = \frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{300}{840}} = 0,94 \quad \text{th } U_8 = 0,775$$

et :

$$U_9 = \frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{300}{170}} = 2,09 \quad \text{th } U_9 = 0,969$$

D'où les corrections $\gamma_{6/8} = 0,78$, $\gamma_{6/9} = 0,462$ et $\gamma_{8/9} = 0,62$.

Ces corrections introduisent une incertitude liée à l'erreur sur la mesure du temps de diffusion. L'incertitude est de 2,5 % pour $\gamma_{6/8}$ et $\gamma_{6/9}$. Elle est plus faible, de l'ordre de 1 % pour $\gamma_{8/9}$.

Finalement, l'incertitude sur les rapports est de 8 % pour ${}^6\text{Li} / {}^8\text{Li}$ et de 15 % pour ${}^6\text{Li} / {}^9\text{Li}$. Le rapport ${}^8\text{Li} / {}^9\text{Li}$, mesuré indépendamment, est connu à 15 % près également.

Pour les sections efficaces absolues, il faut partir de $\sigma({}^6\text{Li}) = 9,8 \text{ mb}$ connu à 20 % près par les expériences différées (voir chapitre II).

Finalement :

$$\sigma {}^8\text{Li} = 210 \pm 46 \mu\text{b}$$

$$\sigma {}^9\text{Li} = 20 \pm 5 \mu\text{b}$$

La précision est évidemment moins bonne que pour les rapports isotopiques mais reste satisfaisante.

Le résultat sur ${}^9\text{Li}$ est à comparer à celui obtenu par GAUVIN et al. (33) :

$$\sigma {}^9\text{Li} = 17 \mu\text{b} \pm 4$$

L'accord est d'autant plus satisfaisant que le rapport d'embranchement du ${}^9\text{Li}$ en neutrons n'est connu qu'à 20 % près (34).

Résultats obtenus sur ^{11}B

Ces résultats, obtenus en employant le balayage magnétique, sont moins précis et n'ont qu'une valeur indicative. Nous les donnons en appendice.

IV - APPLICATIONS POSSIBLES A LA CARACTERISATION D'ISOTOPES

NOUVEAUX

Des travaux récents, dus notamment à BAZ, GOLDANSKI et ZELDOVICH^{(35) (36)}, ont montré que de très nombreux nuclides émetteurs β situés loin de la stabilité dont l'existence est probable n'ont pu encore être caractérisés expérimentalement.

A cet égard, la spectrométrie de masse qui permet une bonne identification des noyaux produits au cours de réactions complexes pourrait constituer un outil de choix. Après avoir relaté une tentative que nous avons faite pour caractériser ^8He , nous discuterons des possibilités de recherche d'autres isotopes.

a) Recherche de ^8He

C'est GOLDANSKI⁽³⁷⁾ qui présenta le premier une série d'arguments fondés sur systématique des noyaux légers qui conduisaient à penser que ^8He pouvait être lié. Au moment où nous avons mis au point notre méthode (début 1965), la situation expérimentale était assez confuse^{(38), (39), (40)} et nous avons décidé d'essayer notre technique pour la résolution de ce problème.

En irradiant une cible de ^{11}B , on peut produire ^8He par la réaction $^{11}\text{B} (p, 4p) ^8\text{He}$ dont la section efficace doit être comparable à celle de $^{12}\text{C} (p, 4p) ^9\text{Li}$, soit $20\mu\text{b}$ comme nous venons de le voir. L'ionisation de l'Hélium étant impossible par effet thermoionique, nous avons pensé pouvoir mettre en évidence ^8He en observant son produit de

décroissance β^- : ${}^8\text{He} \xrightarrow{\beta^-} {}^8\text{Li}$. ${}^8\text{Li}$ est également produit directement par la réaction ${}^{11}\text{B} (p, 3p) {}^8\text{Li}$ et il faut donc pouvoir distinguer le ${}^8\text{Li}$ primaire du ${}^8\text{Li}$ "radiogénique". Nous avons essayé pour cela d'irradier la cible en régime pulsé et d'observer la dépendance de temps du courant de ${}^8\text{Li}$ arrivant au collecteur. Dans ces conditions, si ${}^8\text{Li}$ est seul présent, on devrait observer une décroissance exponentielle du courant due à la diffusion et à la décroissance radioactive, fig. 25 a). Par contre, si ${}^8\text{He}$ est présent et diffuse en un temps de l'ordre de grandeur de sa période radioactive, on observe l'accumulation de ${}^8\text{Li}$ provenant de la décroissance de ${}^8\text{He}$ et la courbe (fig. 25 b) se présentera alors comme la somme des deux phénomènes, l'abscisse du maximum fournissant la période de ${}^8\text{He}$.

Ayant réalisé cette expérience, nous nous sommes aperçus qu'un effet parasite beaucoup plus important que celui que nous voulions mettre en évidence nous empêchait de conclure^(°) (fig. 25 c). Il s'agit de la décroissance radioactive des atomes de ${}^8\text{Li}$ sur la dynode du multiplicateur dont nous avons déjà parlé. C'est d'ailleurs le recoupement entre cette expérience et le tracé du spectre par balayage magnétique qui suggère cette explication, importante pour l'interprétation de nos mesures de sections efficaces pour ${}^8\text{Li}$ et ${}^9\text{Li}$.

b) Recherche d'autres isotopes

La difficulté pour détecter ${}^8\text{He}$ est très particulière : le nombre de noyaux légers ayant des isobares émetteurs α est probablement très restreint. D'autre part, la sensibilité de détection sera bien meilleure si l'on choisit un isotope d'élément alcalin. Les possibilités ne manquent pas et l'on pourrait, par exemple, rechercher ${}^{11}\text{Li}$, ${}^{19}\text{Na}$, ${}^{27}\text{Na}$, ${}^{28}\text{Na}$, ${}^{29}\text{Na}$, ${}^{30}\text{Na}$, ${}^{31}\text{Na}$, ainsi qu'un nombre équivalent d'isotopes de K, Rb et Cs, aussi bien excédentaires que déficients en neutrons.

(°) Depuis lors, ${}^8\text{He}$ a été nettement mis en évidence par POSKANZER et al. (70), ainsi que par CERNY et al. (71), ce qui a rendu caducs nos efforts.

Le problème de l'identification de ces noyaux étant résolu par l'emploi du spectromètre de masse, il reste à trouver des réactions permettant de former ces noyaux. Plusieurs propositions ont été faites en ce sens⁽³⁵⁾, mais nous pensons que les réactions de fragmentation à haute énergie pourraient être très intéressantes à cet égard, en permettant la formation de fragments très riches en neutrons à partir de cibles lourdes, ainsi que le montre la systématique de ces réactions que nous exposons au chapitre suivant.

Nous nous proposons, par conséquent, de réaliser une telle expérience à l'aide de protons d'énergie égale à 10 GeV. La cible, fig. 26, sera constituée d'un empilement de feuilles minces de C et d'un métal lourd (U, Ta, etc. . . .). Les fragments émis pendant la réaction sont projetés et amenés à l'arrêt dans le graphite. La diffusion et l'ionisation auraient lieu exactement de la même façon que dans l'expérience réalisée à 150 MeV⁽⁶⁴⁾.

c) Application à la production en continu d'isotopes à vie courte pour la spectroscopie nucléaire

On peut remarquer que les intensités recueillies au collecteur dans nos expériences ne sont pas négligeables : 10^4 par seconde environ dans le cas de ${}^6\text{Li}$. Si l'on pouvait disposer en régime continu d'un nombre équivalent de nuclides de courtes périodes, on pourrait sans nul doute envisager des études de spectroscopie nucléaire impossibles par des procédés plus classiques.

Cette intéressante application de notre méthode est actuellement tentée au Laboratoire par AMAREL et FOUCHER. Utilisant une cible de graphite-uranium, analogue à celle qui est décrite au paragraphe précédent, on peut obtenir par fission, sous l'action de protons de 150 MeV, des intensités d'isotopes du Rb et Cs qui rendront certainement possible d'obtenir

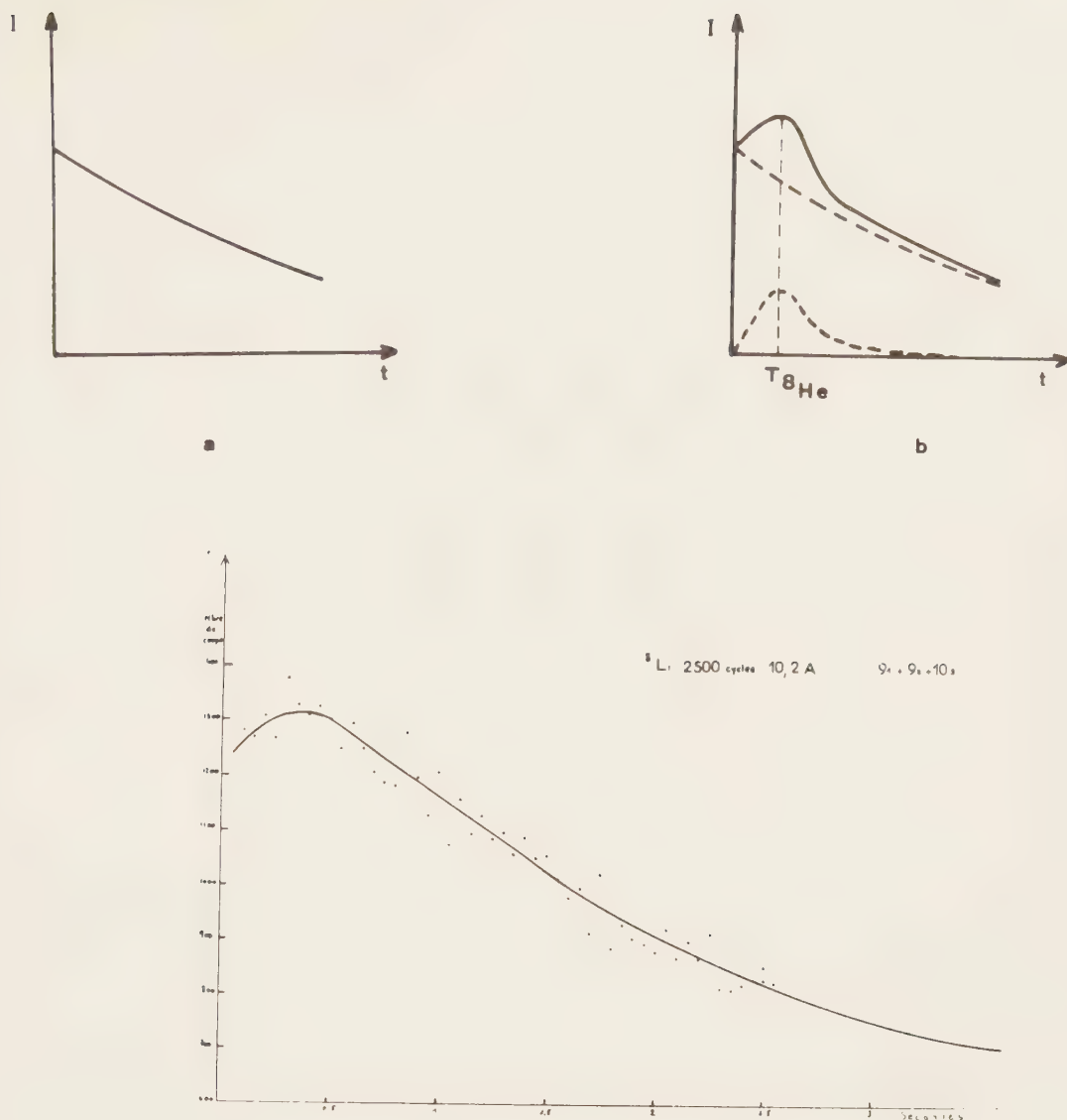


Fig. 25 : Recherche de ^8He .

Sur la figure :

(page 55)

- a : nous avons représenté la courbe de diffusion de ^8Li telle qu'on l'imagine a priori : analogue à la courbe 21 avec une simple différence de pente tenant compte de la décroissance radioactive de ^8Li .
- b : il s'agit toujours d'une courbe a priori où l'on admet qu'il se forme dans la réaction une certaine proportion d' ^8He . Par suite de l'accumulation de ^8Li , provenant de la décroissance β de ^8He dont la période est courte, on observerait une "bosse" dans la courbe de type a. L'abscisse du maximum de cette bosse donnerait la période de ^8He comme il est classique en radioactivité.
- c : courbe expérimentale : par suite de l'effet parasite dont il est question dans le texte, on ne peut conclure.

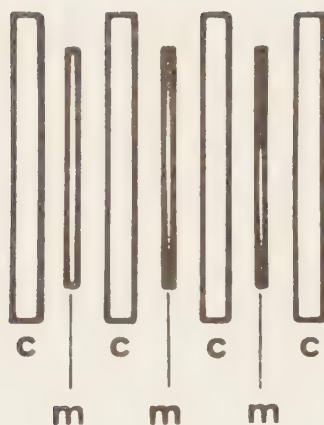


Fig. 26 : Schéma de principe d'une cible composite destinée à étudier les fragments produits dans une cible lourde à grande énergie.

(page 56)

On alterne des feuilles minces d'un métal lourd M et de graphite C. Les feuilles de M sont minces par rapport au parcours des fragments énergiques produits dans la réaction (quelques mg/cm^2). Les fragments sont ralentis dans le graphite chauffé dont ils sortent par diffusion. A plus basse énergie (150 MeV), ce dispositif n'est applicable dans de bonnes conditions qu'à la fission, les produits de spallation ayant des parcours trop peu importants.

des résultats intéressants dans ce domaine nouveau^(°).

Nous donnons, par ailleurs (annexe IV), la comparaison entre cette méthode et l'utilisation proposée d'un séparateur d'isotopes.

(°) A titre d'exemple, les intensités suivantes ont pu être obtenues à partir d'une cible contenant 200 mg d'uranium environ :

^{94}Rb (3s) : 5000 coups/s - ^{95}Rb (2 s) : 1800 coups/s

^{139}Cs (9,5 m) : 15.000 coups/s - ^{142}Cs (2,3 s) : 4000 coups/s

(AMAREL : communication particulière).

CHAPITRE V

DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DES TENTATIVES DE TRAITEMENT QUANTITATIF

Pour les raisons que nous avons déjà exposées, les résultats que nous présentons dans ce travail concernent d'une part des produits de réactions nucléaires (^6Li , ^7Li , ^8Li , ^9Li) dans une cible légère ^{12}C à 150 MeV et d'autre part, des sections efficaces de production d'isotopes stables (^6Li , ^7Li , ^{23}Na) dans des cibles lourdes (Rh, Ta, Pt) à haute énergie (20 à 30 GeV).

Il est sans doute impropre de parler de "fragmentation" à propos de la production de ^6Li à partir de ^{12}C et cependant le terme de "spallation" ne paraît guère adapté non plus à cette situation ^(°). Indépendamment de toute hypothèse sur la dynamique de ces processus, nous avons pensé que la façon la plus simple de rendre compte quantitativement des sections efficaces que nous avons mesurées, était d'utiliser une méthode statistique que nous avons proposée en collaboration avec E. GRADSZTAJN et F. YIOU ⁽⁴¹⁾.

Après avoir rappelé brièvement le principe et les résultats de ce calcul qui est décrit en détail par ailleurs ⁽²⁶⁾, nous discuterons plus particulièrement du sens physique de l'accord de ce modèle avec les résultats expérimentaux. Nous aborderons ensuite les problèmes beaucoup plus complexes posés par les phénomènes de fragmentation dans les cibles lourdes, examinant d'abord les résultats

^(°) On peut remarquer comme le fait SWIATECKI ⁽⁴³⁾ que la barrière de fission (qui passe par un maximum pour $A \sim 100$) redevient petite pour les noyaux légers. On pourrait donc également admettre que pour ^{12}C une partie des phénomènes puisse être expliquée par la fission...

expérimentaux et discutant pour terminer de la validité des tentatives de traitement quantitatif.

I - CALCULS STATISTIQUES APPLIQUES A ^{12}C .

On sait qu'un grand nombre de faits expérimentaux relatifs aux réactions à grande énergie sont expliqués de façon satisfaisante par le modèle de réaction en deux étapes introduit par SERBER ⁽⁴²⁾ : après la "cascade intranucléaire", succession rapide de collisions nucléon-nucléon dans la matière nucléaire, subsiste un noyau intermédiaire excité dont la désexcitation s'effectuera plus lentement par plusieurs voies en compétition (émission de nucléons ou d'entités plus complexes, fission, émission de photons). Se basant sur ce modèle physique, divers procédés de calcul ont été employés, les meilleurs résultats ayant été obtenus en traitant chacune des deux étapes comme une succession de phénomènes stochastiques "simulés" par la méthode de Monte-Carlo mise en application à l'aide de puissants ordinateurs.

L'application de ces procédés à ^{12}C n'avait pas été faite auparavant et l'on pouvait se demander jusqu'à quel point il était légitime d'appliquer un calcul statistique à un système comprenant un si petit nombre de nucléons.

GRADSZTAJN ⁽⁴⁴⁾ montra cependant que la cascade intranucléaire pouvait être traitée par la méthode de Monte-Carlo d'une façon qui rendait compte correctement d'un certain nombre de faits expérimentaux. Une des originalités de son travail consista à examiner la possibilité que les collisions des protons au cours de la cascade puissent se faire non seulement sur des nucléons mais également sur des sous-structures α existant à titre transitoire dans le noyau.

Le traitement de l'étape de désexcitation posait plus de problèmes. Il nous a semblé difficile d'appliquer purement et simplement le formalisme de l'évaporation de WEISSKOPF et cela, non seulement pour des raisons à priori (faible nombre de nucléons) mais également

par suite de la difficulté de principe de définir une densité de niveaux pour les noyaux légers. C'est pourquoi, nous nous sommes proposés⁽⁴¹⁾ d'employer pour ce calcul un procédé statistique différent, basé sur un modèle imaginé par FERMI⁽⁴⁵⁾ pour rendre compte de la production multiple de mésons π dans les interactions de nucléons à grande énergie.

D'après FERMI, une grande énergie concentrée de façon soudaine dans un petit volume se répartira suivant les divers degrés de liberté du système suivant des lois statistiques de sorte que chacun des états finaux possibles se produira avec une probabilité fonction du volume d'espace de phase qui lui correspond.

Le calcul effectif des poids statistiques, tenant compte de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, des multiplicités dues au spin et de l'indiscernabilité des particules a été effectué par plusieurs auteurs^{(46) (47)}. Dans le cas non relativiste, on obtient :

$$S_n = \frac{(\Omega / h^3)^{n-1}}{(2\pi)^3 (n-1)/2} \prod_j \frac{(2I_j + 1)}{\pi_{s_n} n_s! \frac{\Gamma(3(n-1))}{2}} T^{\frac{3n-5}{2}} \frac{\prod_{j=1}^n M_j^{3/2}}{(\sum_{j=1}^n M_j)^{3/2}} \quad (1)$$

avec les notations

T = énergie cinétique totale disponible pour la réaction

Ω = volume d'interaction

I_J, M_J = spin et masse de la particule J émise.

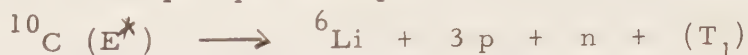
n = nombre de particules émises

n_s = nombre de particules semblables

Le seul paramètre intervenant dans cette formule est le volume d'interaction Ω . Pour l'application aux réactions nucléaires, nous l'avons pris égal au volume du noyau $V = \frac{4}{3} \pi r_0^3 A$ (°)

(°) Nous verrons plus loin que ceci revient à négliger la barrière coulombienne dans l'émission de particules chargées. Pour des noyaux très légers l'erreur introduite par cette approximation n'est pas très importante.

On peut alors calculer le poids statistique d'une voie de désintégration telle que, par exemple :



ou



En sommant sur toutes les voies possibles conduisant ainsi à ^6Li , on aura la probabilité de formation de ^6Li à partir de $^{10}\text{C} (E^*)$. Il restera ensuite à effectuer le même calcul pour tous les noyaux résiduels de cascade avec leur spectre d'énergie d'excitation. A noter que chaque niveau stable (par émission de particule) d'un noyau final est compté comme une entité nucléaire distincte avec sa masse et son spin. Ces calculs, simples dans leur principe, sont cependant longs à effectuer et nous présentons (Tableau X) la comparaison entre les résultats obtenus à l'aide de l'ordinateur UNIVAC 1107 de la Faculté des Sciences d'Orsay et le résultat de nos expériences.

TABLEAU X

Noyau final	σ calculé mb	σ expérimentale mb
^7Be référence	12,1	$12,1 \pm 10\%$
^6Li	9,9	$9,8 \pm 2$
^7Li	8,6	$7,8 \pm 1,6$
^8Li	1,1	$0,210 \pm 0,04$
^9Li	0,040	0,020

Comparaison entre les calculs et les expériences pour ^{12}C à 150 MeV

L'accord est bon dans l'ensemble (à l'exception de ^8Li) et confirme l'accord déjà souligné par GRADSZTAJN pour plusieurs autres noyaux.

Le fait le plus frappant, peut-être, de nos résultats expérimentaux, la décroissance très rapide des sections efficaces dès que les noyaux produits s'éloignent de la stabilité est très bien rendu par le calcul.

Il est certain que, dans le cas d'un système tel que ^{12}C , il s'agit pour une part d'un problème d'analyse combinatoire : il existe beaucoup moins de voies pour former un noyau excédentaire en neutrons tel que ^9Li que pour former ^6Li . Cet effet, qu'il serait d'ailleurs intéressant d'étudier en prenant ^{13}C pour cible est implicitement compris dans le calcul que nous avons décrit.

Mais le calcul tient compte également d'un autre facteur moins particulier, qui peut expliquer la tendance vers la stabilité : le bilan d'énergie d'une réaction aboutissant à un noyau stable est plus favorable et l'espace de phase disponible en conséquence est plus grand.

Cette tendance à la stabilité est également observée (comme nous le verrons plus loin) pour les réactions de fragmentation des noyaux lourds. Si dans ce cas, les calculs utilisant le formalisme de Fermi ("F") deviennent vite inextricables, on sait que le formalisme de WEISSKOPF ("W") a été utilisé avec succès par de nombreux auteurs. Il nous a donc semblé intéressant d'examiner les bases théoriques des deux modèles et quelles sont entre eux les différences réelles.

II - COMPARAISON ENTRE LES MODELES STATISTIQUES DE FERMI ET DE WEISSKOPF.

La base théorique des deux formalismes est le principe du bilan détaillé qui régit les probabilités de transition entre deux états quantiques a et b

On peut écrire

$$\rho_a w_{ab} = \rho_b w_{ba}^* \quad (2)$$

w_{ab} = probabilité de transition de a vers b

w_{ba}^* = probabilité du processus inverse

ρ_a et ρ_b sont les densités de niveaux disponibles dans les états a et b.

Dérivation de la formule de WEISSKOPF

Rappelons comment on déduit de (2) la formule de WEISSKOPF.

Si v_i est la vitesse d'une particule émise d'énergie ϵ_i on aura, V étant un volume de normalisation et $\sigma_i^*(\epsilon_i)$ la section efficace de la réaction inverse de l'émission

$$w_{ba}^* = \frac{v_i \sigma_i^*(\epsilon_i)}{V}$$

La densité d'états finaux ρ_b est le produit de deux facteurs :

$$\rho_b = g_i \frac{4\pi}{h^3} p_i^2 \frac{dp_i}{d\epsilon_i} V \quad \rho_f(\epsilon_i)$$

facteur d'espace de phase pour l'émission de la particule

densité de niveaux du noyau résiduel après l'émission de la particule de type i

Comme

$$\frac{dp_i}{d\epsilon_i} = \frac{1}{v_i}$$

On obtient finalement

$$w_{ab} = g_i \frac{4\pi}{h^3} p_i^2 \sigma_i^*(\epsilon_i) \frac{\rho_f(\epsilon_i)}{\rho_a} \quad (3)$$

Si ρ_a est la densité de niveaux du noyau initial dont l'énergie d'excitation est U , l'énergie d'excitation du noyau résiduel

après émission d'une particule d'énergie cinétique ϵ_i et d'énergie de liaison B_i sera $U - B_i - \epsilon_i$

On retrouve en transformant en conséquence l'équation (3) les notations familières de la formule de Weisskopf

$$W(\epsilon_i) d\epsilon_i = \frac{g_i}{\pi^2 \hbar^3} \mu_i \epsilon_i \sigma_i^*(\epsilon_i) \frac{\rho'(U - B_i - \epsilon_i)}{\rho(U)} d\epsilon_i \quad (4)$$

Remarquons en passant qu'à aucun moment on n'a spécifié la nature de la particule émise. Il peut s'agir non seulement d'un neutron mais aussi d'une particule plus complexe.

Dérivation de la formule de FERMI.

Là aussi, la filiation du théorème de bilan détaillé est apparente. Le poids statistique de FERMI pour une rupture en n corps est

$$S_n = \left(\frac{\Omega}{V} \right)^{n-1} \left(\frac{V}{8 \pi^3 \hbar^3} \right)^{n-1} \frac{dQ}{dT}$$

T est l'énergie cinétique totale disponible pour la réaction et Q est le volume d'espace des moments correspondant.

On voit que le premier terme $\left(\frac{\Omega}{V} \right)^{n-1}$ est égal à la probabilité de trouver les n particules présentes au même moment dans une portion Ω de V. C'est donc tout simplement w_{ba}^* .

Les deuxième et troisième termes sont évidemment les termes d'espace de phase disponible pour cette réaction en n corps. Pour montrer que le parallélisme est complet, il faut observer que le terme de densité de niveaux n'est pas nécessaire ici puisqu'aussi bien nous avons appliqué le formalisme "F" à un niveau discret considéré comme une individualité.

On voit donc que les 2 formulations, si différentes que soit leur apparence, ont en fait une base théorique commune : l'hypothèse d'un équilibre statistique qui autorise l'emploi du principe du bilan détaillé.

La différence tient en fait au point de vue différent auquel on se place dans chacun des cas. A l'aide du formalisme "W" on peut calculer les probabilités dans une chaîne d'évaporations successives (voir figure 27).

On part d'un noyau (A, Z, E) qui après évaporation d'une particule (m_1, ξ_1) donne un noyau (A', Z', E') lequel évapore à son tour une particule (m_2, ξ_2) en laissant un noyau (A'', Z'', E'') etc... le processus s'arrête lorsque le noyau (A^n, Z^n, E^n) n'a plus assez d'énergie pour émettre une autre particule et le résultat final de cette chaîne d'évaporations a été de nous fournir des noyaux (m_1, ξ_1) (m_2, ξ_2) (m_n, ξ_n) et (A^n, Z^n, E^n) ^(°)

On pourrait songer à comparer la probabilité composée d'avoir un tel processus avec la probabilité donnée par "F" d'avoir une rupture.

$$(A, Z, E) \longrightarrow \left[m_1, m_2, \dots, m_n, A_n, Z^n \right]$$

C'est ici qu'apparaît la différence des points de vue : il existe une infinité de "chaînes d'évaporation" dont le résultat final sera le même ensemble de noyaux mais qui diffèrent suivant l'ordre d'émission des particules et la fraction de l'énergie disponible qu'elles emportent sous forme d'énergie cinétique.

On conçoit qu'une comparaison analytique détaillée soit difficile et l'on comprend la nécessité de faire appel à la méthode de Monte-Carlo : en effectuant un grand nombre de chaînes d'évaporation, l'influence d'une séquence particulière sur les probabilités d'obtenir finalement un ensemble donné de produits sera éliminée et les résultats doivent en principe être les mêmes que ceux de "F".

(°) On n'altère pas la généralité du raisonnement en supposant que $A^n Z^n$ est dans son état fondamental. Alors, E^n n'est autre que l'énergie cinétique emportée.

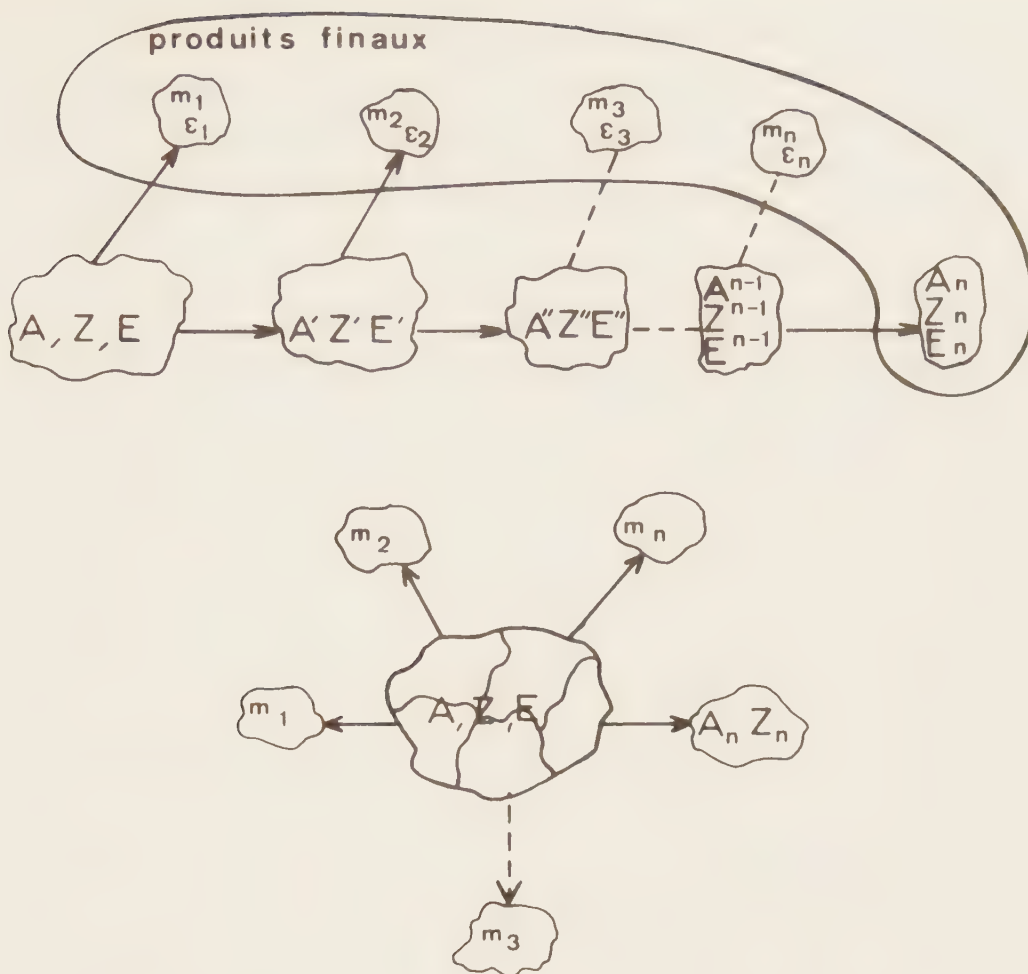


Fig. 27 : Comparaison entre une chaîne d'évaporations successives donnant des noyaux de masse et d'énergie cinétique données $(m_1, \epsilon_1, \dots, m_n, \epsilon_n$ et (A_n, Z_n, E_n) et une rupture multiple donnant lieu aux mêmes produits finaux.

(page 65)

Il existe une infinité de chaînes d'évaporation aboutissant aux mêmes produits finaux qui diffèrent entre elles par l'ordre d'émission des particules et les énergies cinétiques ϵ emportées. L'emploi d'une méthode de Monte-Carlo permet d'effectuer une moyenne entre toutes ces chaînes.

Le formalisme F donne une expression analytique du poids statistique correspondant à une voie de désintégration. Lorsque son emploi est possible, il évite donc le recours à une méthode de Monte-Carlo.

(page 65)

Il est cependant un cas où les deux formalismes peuvent être comparés analytiquement de façon simple : c'est celui d'une rupture en deux corps où toute l'énergie disponible est emportée sous forme d'énergie cinétique. Montrons que dans ce cas, les probabilités sont les mêmes.

On suppose que les deux noyaux résultants sont dans leur état fondamental (ou tout au moins dans des niveaux d'énergie bien déterminés) ce qui évite de tenir compte du terme de densité de niveaux. Si l'on prend par ailleurs la formule de WEISSKOPF dans le système du centre de masse on peut écrire :

$$w_2(T) = \frac{g_i}{\pi^2 \hbar^3} \mu T \sigma^*(T)$$

$$\mu \text{ étant la masse réduite } \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \text{ et } T \text{ l'énergie}$$

cinétique disponible dans le centre de masse.

Pour "F" l'application de la formule (1) donne :

$$S_2 = \frac{g_i}{\sqrt{2} \pi^2 \hbar^3} \Omega T^{1/2} \mu^{3/2}$$

Comme on a $\Omega = v \sigma^*$, on vérifie que les deux formules sont identiques car :

$$\mu T \sigma^* \equiv \frac{v}{\sqrt{2}} T^{1/2} \mu^{3/2}$$

ainsi qu'on le vérifie aisément en élevant cette expression au carré.

Notre conclusion sera par conséquent que les deux formalismes ont exactement le même contenu physique. L'emploi de l'un ou de l'autre dans les différents cas se justifiera essentiellement par la commodité plus ou, moins grande des calculs, une application correcte devrait en tout état de cause donner les mêmes résultats.

Le succès que nous avons obtenu en appliquant le formalisme "F" aux noyaux légers nous conduira donc à considérer

avec attention les tentatives faites par différents auteurs ⁽⁴³⁾ pour appliquer le formalisme "W" à l'émission de fragments à partir de cibles lourdes. Avant d'en discuter de façon plus approfondie (paragraphe IV) nous allons revoir un certain nombre de résultats expérimentaux en liaison avec le résultat de notre travail.

III - DISCUSSION DES DONNEES EXPERIMENTALES SUR LES SECTIONS EFFICACES.

Nous discuterons ici plus particulièrement de la variation des sections efficaces suivant la nature de la cible et du fragment, points sur lesquels a porté notre étude. Bien entendu, une théorie complète de la fragmentation devrait également englober les autres faits expérimentaux tels que nous les avons esquissés brièvement au Chapitre I. Nous en discuterons au paragraphe V.

a) Influence de la taille des fragments : courbe de distribution de masse.

On sait le rôle que joue une telle courbe dans le développement des idées sur la fission ⁽⁵⁵⁾. Dans le cas des études qui nous intéressent, de très nombreuses données expérimentales font encore défaut. Nous avons néanmoins regroupé (Figure 28) nos résultats expérimentaux avec des résultats obtenus dans d'autres laboratoires ^{(31) (49) (50)}. Ils concernent une cible de Pt bombardée par des protons de 20 à 30 GeV.

La courbe, qui est lisse dans la région des masses $A \sim 20$ présente pour les fragments $A \lesssim 8$ des oscillations qui ne semblent pas dues à des erreurs expérimentales (ceci ne doit pas étonner. le cas-limite est la masse 5 où τ est égale à zéro) et la courbe tracée en pointillés ne représente pas autre chose qu'une tendance générale dans cette région. Elle peut néanmoins permettre des interpolations utiles pour $A \gtrsim 10$.

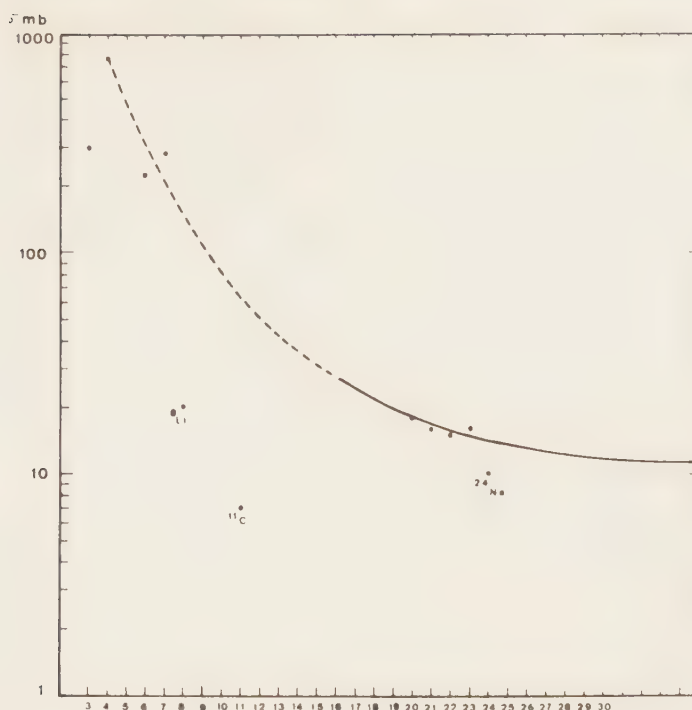


Fig. 28 : Courbe de distribution de masse des fragments légers formés en bombardant une cible $A \sim 190$ par des protons de 20 à 30 GeV.

Pour chaque valeur de masse on a porté le rendement total isobarique correspondant, c'est-à-dire :

masse 6 : ${}^6\text{Li} + {}^6\text{He}$ nos mesures ainsi que ROWLAND et WOLFANG⁽³¹⁾
masse 7 : ${}^7\text{Li} + {}^7\text{Be}$ nos mesures ainsi que HUDIS pour ${}^7\text{Be}$
masse 20 et 21 : ${}^{20}\text{Ne}$ et ${}^{21}\text{Ne}$ } SCHAEFFER et HUDIS
masse 22 : ${}^{22}\text{Ne} + {}^{22}\text{Na}$
masse 23 : nos mesures pour ${}^{23}\text{Na} / {}^{24}\text{Na}$ comparées à celles de HUDIS pour ${}^{24}\text{Na}$.

On a porté, en outre, des données incomplètes à la masse 8 (${}^8\text{Li}$) à la masse 11 (${}^{11}\text{C}$) et à la masse 24 (${}^{24}\text{Na}$).

Aux masses 3 et 4, nous avons porté les valeurs obtenues par GOEBEL, SCHULTES et ZHRINGER (CERN 64 - 12) pour une cible de Cu (les mesures faites par les mêmes auteurs sur des cibles plus lourdes à 0,6 GeV n'indiquent pas de variation avec la masse de la cible).

Enfin, nous avons extrapolé la courbe pour $A > 23$ d'après les données de FRIEDLANDER⁽⁵⁵⁾.

Quoi qu'il en soit, l'examen de cette courbe permet d'affirmer que la section efficace augmente nettement quand la taille du fragment émis diminue. Une dépendance de ce type est importante. Elle exclut absolument que les fragments observés soient le résidu de longues chaînes de spallation partant de la cible. Elle montre que, par un mécanisme à préciser, les fragments sont émis en tant qu'entités.

La dépendance de la charge des fragments ne nous paraît pas présenter la même signification fondamentale que la dépendance de masse. Il s'agit certes d'une constatation expérimentale importante effectuée dans l'émulsion mais, si son allure observée rappelle celle de la distribution des masses, c'est à cause d'une coïncidence : pour les fragments légers stables (qui sont les plus abondants) on a $A \simeq 2Z$.

Par contre, pour une même masse, la distribution de charge (ou dispersion de charge) qui traduit la plus ou moins grande stabilité des fragments nous paraît une donnée très importante.

b) Dispersion des charges : influence de la richesse en neutrons des fragments.

La première indication dans ce domaine est due à PERFILOV ⁽³⁾ qui montra en comparant les données de l'émulsion aux données radiochimiques que la majeure partie des fragments était probablement des isotopes stables. Cette conclusion était tout à fait correcte ainsi que le montrent les résultats du tableau XL.

Les résultats pour ^8Li et ^9Li sont approximatifs. Il serait évidemment intéressant de procéder à une mesure directe de ces sections efficaces.

TABLEAU XI

${}^6_{\text{Li}}$ mb	${}^7_{\text{Li}}$ mb	${}^8_{\text{Li}}(^{\circ})$ mb	${}^9_{\text{Li}}(^{\circ})$ mb
180	250	21	12

Sections efficaces des isotopes du Li à partir d'une cible $A \sim 190$ bombardée par des protons de 30 GeV

De toutes façons, la dépendance isotopique est dans cette région la résultante de deux facteurs : la dépendance de masse et la dépendance de stabilité. Il serait donc encore plus intéressant d'avoir pour une même masse, la répartition entre les fragments des différents Z .

Malheureusement, on manque ici de données expérimentales. Pour avoir une idée approximative, nous partirons de la remarque de J. HUDIS ⁽⁵³⁾ selon lequel les rapports des sections efficaces des fragments excédentaires et déficients en neutrons sont constants dans les cibles lourdes $A \geq 100$ à haute énergie.

ainsi $\frac{{}^{22}_{\text{Ne}}}{{}^{22}_{\text{Na}}} \sim 6$ dans Au ⁽⁵³⁾

de même $\frac{{}^{24}_{\text{Na}}}{{}^{18}_{\text{F}}} \sim 4$ ⁽⁵⁴⁾ (mais il faut appliquer

un facteur correctif égal à 1,5 environ pour passer de la masse 24 à la masse 18)

de même $\frac{{}^7_{\text{Li}}}{{}^7_{\text{Be}}} \sim 8$ dans Pt (nos résultats)

([°]) Nous avons utilisé les résultats obtenus à 2 GeV par KATCOFF, BAKER et PORILE (52) pour ${}^8_{\text{Li}}$ et DOSTROVSKY et al (51) pour ${}^9_{\text{Li}}$. Afin de normaliser à la même énergie, nous nous sommes appuyés sur les indications de J. HUDIS qui a étudié la variation en énergie des sections efficaces entre 3 et 30 GeV.

On peut d'autre part supposer que les sections efficaces des fragments présentent (par analogie avec la fission) une distribution gaussienne autour de la valeur la plus probable (qui serait, dans le cas des fragments, voisine de la stabilité). C'est ainsi que groupant les résultats obtenus aux masses 6 et 7, nous avons porté sur une parabole en coordonnées semi-logarithmiques les valeurs de ${}^6\text{He}$, ${}^6\text{Li}$ et ${}^7\text{Be}$ (Figure 29).

La remarque faite plus haut revient à admettre que la largeur à mi-hauteur de la distribution des charges est constante pour les masses $A \lesssim 25$.

Il est certain que nous manquons encore de données pour affirmer que tel est bien le cas mais il serait intéressant de procéder à des mesures. A la masse 8, ${}^8\text{Li}$, ${}^8\text{Be}$, ${}^8\text{B}$ sont tous trois mesurables dans l'émulsion. Dans la région des masses 20, la courbe de distribution des masses est assez plate. Par conséquent, des mesures par spectrométrie de masse en ligne des sections efficaces indépendantes de ${}^{20}\text{Na}$, ${}^{21}\text{Na}$, ${}^{22}\text{Na}$, ${}^{23}\text{Na}$, ${}^{24}\text{Na}$, ${}^{25}\text{Na}$, ${}^{26}\text{Na}$ permettraient (dans la mesure où les hypothèses précédentes sont vérifiées) d'obtenir après correction de la courbe des masses, une idée très précise de la dispersion des charges dans cette région. L'utilisation des sections efficaces cumulatives de ${}^{20}\text{Ne}$, ${}^{21}\text{Ne}$, ${}^{22}\text{Ne}$, ${}^{22}\text{Na}$, et ${}^{24}\text{Na}$ fournirait d'ailleurs un recoupement utile.

Nous avons tenté en extrapolant les données relatives à la distribution des masses et en employant l'hypothèse d'une égale dispersion des charges, d'évaluer la section efficace de production du nuclide hypothétique ${}^{11}\text{Li}$. En partant de la section efficace connue de ${}^{11}\text{C}$ (56), on voit que ${}^{11}\text{Li}$ pourrait avoir une section efficace de l'ordre du mb à 10 GeV dans une cible lourde. Cette section efficace est bien supérieure à la limite de sensibilité de notre appareil de sorte que nous envisageons de tenter cette expérience dès que nous

pourrions obtenir l'accès à un accélérateur de haute énergie et possédant un flux de protons suffisamment élevé.

c) Variation des sections efficaces avec la nature de la cible.

Il serait évidemment intéressant d'étudier comment varie la largeur de la dispersion de charge que nous venons de définir avec la nature de la cible. Une étude aussi détaillée n'a pas encore été faite mais on peut néanmoins avoir des indications intéressantes en comparant les études effectuées par différents auteurs.

1. - Les fragments déficients en neutrons ^7Be , ^{11}C et ^{13}N ont, à 2 GeV, des sections efficaces qui diminuent (ou restent à peu près constantes) lorsque le nombre de masse de la cible augmente. (7) (56)

A 30 GeV toutefois, où l'on ne possède de données que pour ^7Be , il semble que la tendance s'inverse puisque ^7Be double en passant de Ca à V (49).

2. - Les fragments très riches en neutrons ^9Li , ^{16}C et ^{17}N ont été étudiés récemment par DOSTROVSKY, DAVIS, POSKANZER et REEDER (51). A 2,8 GeV, on observe de Al à U, une croissance très nette de la section efficace de ^9Li qui passe de 0,2 mb (Al) à 7mb (U) pour ^9Li , celle de ^{17}N varie dans les mêmes conditions de 0,3 à 6 mb.

3. - Les fragments plus proches de la stabilité tels que ^{24}Na et ^{18}F (54) présentent à 2 GeV une courbe à 2 branches : après un minimum vers $A \sim 120$, la section efficace croît à nouveau de la région des terres rares à l'Uranium.

Là aussi, on peut faire remarquer que ce comportement se modifie avec l'énergie : à 30 GeV, on n'observe plus de minimum dans la production de ^{24}Na qui croît régulièrement de 3,5 mb pour Cu à 16 mb pour U (49).

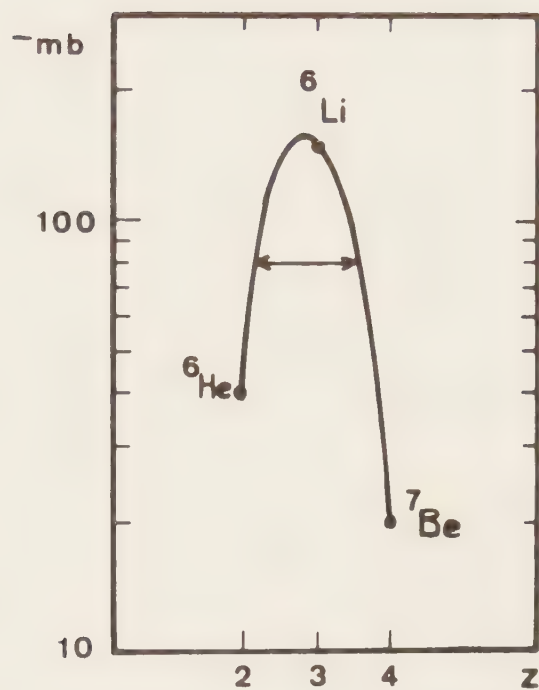


Fig. 29 : Courbe de distribution des charges pour un même nombre de masse (obtenue en regroupant les résultats relatifs à ${}^6\text{He}$ (${}^6\text{Li}$, ${}^7\text{Li}$) et ${}^7\text{Be}$).

(page 72)

De même les données que nous présentons pour ${}^6\text{Li}$ et ${}^7\text{Li}$ semblent indiquer une croissance régulière entre Rh et Pt. Notons en passant l'importance pour effectuer ce genre de comparaisons d'opérer à une énergie supérieure à 10 GeV nécessaire pour que toutes les sections efficaces soient "saturées".

On peut conclure de cette brève discussion que les sections efficaces de formation des fragments très riches en neutrons croissent beaucoup plus vite avec la masse du noyau-cible que celles des fragments plus proches de la stabilité. Il s'agirait là d'une caractéristique importante des réactions de fragmentation : la courbe de dispersion de charge (figure 29) s'étendrait du côté des fragments riches en neutrons. Là encore, il s'agit d'un comportement très différent de la spallation : de longues chaînes de spallation donneront de préférence naissance à des nuclides pauvres en neutrons. A cet égard, on peut penser que des fragments tels que ${}^{13}\text{N}$ peuvent être formés très largement comme résultat de longues chaînes de spallation (éventuellement à partir de fragments très excités).

d) Valeur absolue des sections efficaces de fragmentation.

Il ne s'agit pas d'événements rares, loin de là, puisque 230 mb pour $\sigma({}^6\text{Li}, {}^7\text{Li})$ dans Ta représentent plus de 10 % de la section efficace géométrique. Ce fait n'avait peut être pas été assez souligné par les auteurs qui ont étudié la production de fragments moins fréquents à des énergies moins élevées. Il nous semble nécessaire de le garder présent à l'esprit dans le choix de mécanismes proposés pour donner une interprétation quantitative des phénomènes.

IV DISCUSSION DES TENTATIVES D'INTERPRETATION ET DE TRAITEMENT QUANTITATIF.

1 - Les différents modèles proposés pour expliquer la fragmentation.

L'émission assez surprenante d'un grand nombre de particules complexes dans les interactions de protons de haute énergie avec des noyaux lourds a excité l'imagination de nombreux chercheurs qui se sont évertués à proposer des mécanismes pour l'expliquer. Une revue très complète a été donnée par PERFILOV et al ⁽³⁾ en 1960 et plus récemment par LEFORT ⁽⁴⁾.

On peut, nous semble-t-il, résumer la situation en disant que les fragments légers $6 \leq A \leq 25$ émis par des noyaux lourds ne peuvent être éjectés par choc direct d'un proton sur une sous-structure existant dans le noyau, qu'ils ne peuvent être des fragments de fission ^(°), ni des résidus de longues chaînes de spallation (comme le montrent les résultats discutés au paragraphe précédent).

Face à ce problème, deux approches très différentes sont en présence :

- a) l'emploi d'un modèle à caractère statistique (plus ou moins dérivé du modèle de SERBER)
- b) les tentatives de proposer un nouveau mode de réaction nucléaire appelé fragmentation.

Selon WOLFGANG et al ⁽²⁾, au cours de la cascade, par suite de la production et de la réabsorption de mésons π , une série de points chauds sont créés qui aboutiront à détacher très

(°) Pour les fragments plus lourds tels que ^{32}P et ^{33}P , la situation pourrait être assez différente. Voir un travail récent de SIMONOFF et VIDAL (58).

rapidement (avant toute équipartition de l'énergie) certains morceaux ou fragments de matière nucléaire. C'est donc au cours du développement de la cascade que des distorsions locales violentes amèneront une rupture du noyau sous l'influence conjuguée des forces coulombiennes, des forces superficielles et du moment apporté par les particules de cascade.

Si LOZHKIN ⁽⁵⁹⁾ repousse quant à lui, l'hypothèse d'un rôle important joué par les mésons π , le modèle qu'il propose n'en est pas moins assez voisin : les fragments seraient créés au cours du développement de la cascade par une distorsion importante de la matière nucléaire dans un volume restreint. Leur émission aurait lieu si l'impulsion qui leur est communiquée par la cascade est suffisante.

Il est vrai que, qualitativement, ces modèles permettent de comprendre l'allure de la courbe de distribution de masse ainsi qu'une certaine prédominance de fragments riches en neutrons provenant de cibles lourdes. Sans nier leur intérêt, on doit néanmoins remarquer qu'ils ont été proposés il y a près de dix ans sans avoir été développés jusqu'à présent d'une façon qui permette une comparaison quantitative avec les données expérimentales. ^(°)

Par contre, les modèles statistiques présentent un caractère plus élaboré et se prêtent bien à une comparaison détaillée avec les données de l'expérience. Il est vrai, qu'ils n'expliquent pas le mécanisme de la réaction et que le principe de la validité de leur emploi reste contestable. En l'absence d'un modèle plus fondamental, il est cependant important de voir si les succès obtenus jusqu'à présent peuvent être généralisés au point d'expliquer correctement l'ensemble des faits expérimentaux. Il resterait à comprendre ensuite la raison de cet accord.

(°) Si l'on excepte une tentative due à DENISOV et al ⁽⁶⁰⁾.

2 - Calculs d'évaporation appliqués à la fragmentation :

discussion du principe et comparaison avec l'expérience.

La formule de WEISSKOPF peut s'appliquer sans aucun changement à l'émission de particules complexes telles que ${}^7\text{Be}$, ${}^8\text{Li}$, ${}^{13}\text{N}$, etc... Les premiers calculs furent effectués par HUDIS et MILLER ⁽⁴⁸⁾ et leur méthode approchée fut ensuite perfectionnée par DOSTROVSKY, FRAENKEL et RABINOWITZ ⁽⁶¹⁾.

Insistons sur le fait que cette théorie ne suppose nullement la "préformation" dans le noyau des particules émises et ne fixe pas non plus de limite à la taille des entités que l'on peut traiter de cette façon. A ce sujet, il faut dire que le terme d' "évaporation de particules" qui est consacré par l'usage a tendance à suggérer que ce procédé de calcul est le reflet d'un phénomène physique réel. Même si c'est le cas pour l'émission de neutrons ^(°), il nous semble très

(°) Note : Rappelons brièvement l'origine du terme "évaporation" dans le cas des neutrons. Si l'on admet pour la densité de niveaux l'expression approchée $\rho(U) = C \exp \left\{ 2 \sqrt{a U} \right\}$ et que l'on définisse la température nucléaire Z par $U = a Z^2$, On peut écrire :

$$\rho(U - \varepsilon) = C \exp \left\{ 2 \sqrt{a} \sqrt{U - \varepsilon} \right\}$$

et si $\varepsilon/U \ll 1$, $\sqrt{U - \varepsilon} = \sqrt{U} \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{U}} \simeq \sqrt{U} \left(1 - \frac{\varepsilon}{2U} \right)$

C'est à dire :

$$\rho(U - \varepsilon) = C \exp 2 \sqrt{a U} \exp \left\{ - \varepsilon \sqrt{a/U} \right\} = \rho(U) e^{-\varepsilon/Z}$$

Appliquant ceci à la formule de WEISSKOPF

$$W(\varepsilon_i) d\varepsilon_i = \frac{g_i}{\pi^2 \hbar^3} \mu_i \sigma_i^*(\varepsilon_i) \varepsilon_i \frac{\rho'(U - B_i)}{\rho(U)} e^{-\varepsilon_i/Z} d\varepsilon_i$$

Le spectre d'énergie des neutrons émis est proportionnel à $\varepsilon e^{-\varepsilon/Z}$
C'est donc un spectre maxwellien, analogue à celui des molécules évaporées d'une goutte de liquide chauffé.

peu vraisemblable d'admettre la réalité et la fréquence d'un tel processus pour l'émission de particules aussi complexes que ${}^6\text{Li}$ ou ${}^{23}\text{Na}$.

Plus simplement, ce calcul permet une évaluation de l'espace de phase disponible pour les réactions, compte-tenu des facteurs coulombiens. Il ne s'agit pas à proprement parler d'un "mécanisme de réaction". Bien au contraire, il s'agit des conditions très générales auxquelles doivent satisfaire des réactions complexes pour lesquelles on ne discerne à priori aucun mécanisme particulier.

L'accord des calculs avec les valeurs expérimentales des sections efficaces est assez bon, comme le montrent par exemple les résultats de DOSTROVSKY et al ⁽⁵¹⁾ sur la production de ${}^9\text{Li}$, ${}^{16}\text{C}$ et ${}^{17}\text{N}$.

En particulier, l'influence de la richesse en neutrons des fragments que nous avons mentionnée au paragraphe III apparaît dans le calcul à travers les bilans d'énergie, différents suivant les cas, et ceci est à rapprocher de ce que nous avons fait remarquer à propos de notre calcul sur ${}^{12}\text{C}$. Pour essayer de voir de façon plus précise comment intervient cette corrélation les auteurs se sont attachés à calculer les rapports des sections efficaces de plusieurs fragments à partir de cibles isotopiques. Le tableau XII représente ces prévisions dont la vérification expérimentale constituerait un test intéressant quant à la validité du modèle statistique.

Fragment \ Cible		$^{60}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}$	$^{109}\text{Ag}/^{107}\text{Ag}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$
		(1,14) (1,07)		(1,54) (1,51)
(1)	^6Li	0,90		0,87
(1,33)	^7Li	1,06		0,92
(0,75)	^7Be	0,74	0,80	0,80
(0,83)	^{11}C	0,68	0,78	0,75
(0,85)	^{13}N	0,73	0,89	0,84
(1,43)	^{17}N	1,83	1,51	0,94
(0,7)	^{17}Ne	0,42	0,43	0,60
(1)	^{18}F	0,89	0,83	0,75

TABLEAU XII^(°)

Sections efficaces calculées par DOSTROVSKY et al⁽⁵¹⁾ pour des cibles isotopiques

A cet égard, la spectrométrie de masse qui permet de comparer avec précision les sections efficaces de deux fragments isotopes peut constituer un instrument de choix. Par exemple, la variation de 16 %, dans le rapport $\frac{^7\text{Li}}{^6\text{Li}}$, en passant de ^{58}Ni à ^{60}Ni serait facile à mettre en évidence. On devrait de même obtenir un effet isotopique marqué en passant de ^{92}Mo (N/Z = 1,19) à ^{100}Mo (N/Z = 1,38) et nous nous proposons d'entreprendre prochainement cette étude.

On peut généraliser les observations sur les effets isotopiques de cible en remarquant qu'ils donnent, en quelque sorte, la pente de la courbe $\sigma = f(A)$. On retrouve ainsi qualitativement l'allure

(°) N. B. : les nombres entre parenthèses représentent la composition N/Z des nuclides considérés.

de la variation générale des sections efficaces avec le A de la cible dont nous avons parlé au paragraphe III.

En résumé, il serait important d'établir par des expériences plus nombreuses si l'accord avec les prévisions du modèle statistique a vraiment un caractère général. Il est intéressant à cet égard de noter que d'après un calcul récent de PORILE⁽⁶²⁾ sur l'émission de ^{24}Na , les spectres en énergie sont eux-mêmes mieux rendus par les calculs d'évaporation qu'on ne le pensait généralement.

Cet accord, s'il était confirmé nous fournirait certes un moyen de calculer des sections efficaces non connues mais un certain nombre de questions intéressantes n'en subsisteraient pas moins.

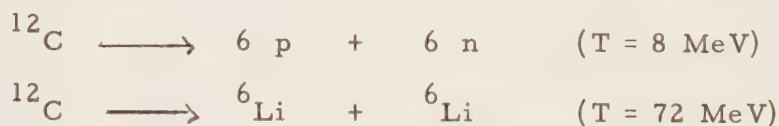
1) Un procédé statistique ne donne par lui-même aucun renseignement sur le mécanisme du phénomène. Il serait certes intéressant de trouver un modèle permettant d'aller plus loin dans l'explication mais ceci peut sembler prématuré dès lors que les faits expérimentaux ne sont pas connus avec suffisamment de détails.

2) Le fait que le modèle statistique fournisse des résultats valables dans des systèmes aussi fortement excités est lui-même tout à fait surprenant comme l'a fait remarquer ERICSON⁽⁶³⁾.

L'application du modèle statistique suppose en effet un système dont le temps de vie soit supérieur au temps de relaxation pour la répartition de l'énergie. Or, d'après son estimation, dès que l'énergie d'excitation atteint 200 MeV environ dans un noyau de $A = 100$, on aura affaire à un système incomplètement équilibré. De nombreuses données expérimentales indiquent que les énergies d'excitation sont bien supérieures dans les réactions de fragmentation^{(13) (6)}. On serait donc dans un cas où le modèle statistique ne serait pas applicable au sens strict mais où la grande généralité du concept d'espace de phase permet néanmoins des prévisions approximatives.

La situation est évidemment la même pour le modèle statistique de FERMI qui est, encore plus explicitement, une évaluation de l'espace de phase disponible pour les réactions. A ce propos, nous avons essayé de préciser sur un exemple les restrictions apportées par l'espace de phase à la désexcitation de noyaux ayant une énergie supérieure à leur énergie totale de liaison. Ce calcul^(°), que nous avons effectué dans le cas de ^{12}C nous paraît expliquer pourquoi l'on n'observe jamais dans ce cas la désintégration complète. Il s'agit là d'une situation qui n'est paradoxale qu'en apparence et qui se comprend ainsi d'une façon très simple.

(°) Soit, par exemple, un noyau de ^{12}C excité à 100 MeV (l'énergie totale de liaison d'un ^{12}C est de 92 MeV) et comparons 2 voies de désexcitation considérées comme des cas extrêmes :



L'application de la formule (1) du paragraphe I montre que le deuxième processus est beaucoup plus probable que le premier. La courbe (30) montre qu'il existe toute une région d'énergie d'excitation supérieure à l'énergie totale de liaison où l'on n'observera pas la décomposition complète pourtant énergétiquement permise. En fait, l'énergie nécessaire pour que la désintégration complète devienne le processus le plus probable se situe bien au-delà de l'énergie qui peut être laissée au noyau, même après une cascade initiée par un proton très énergétique.

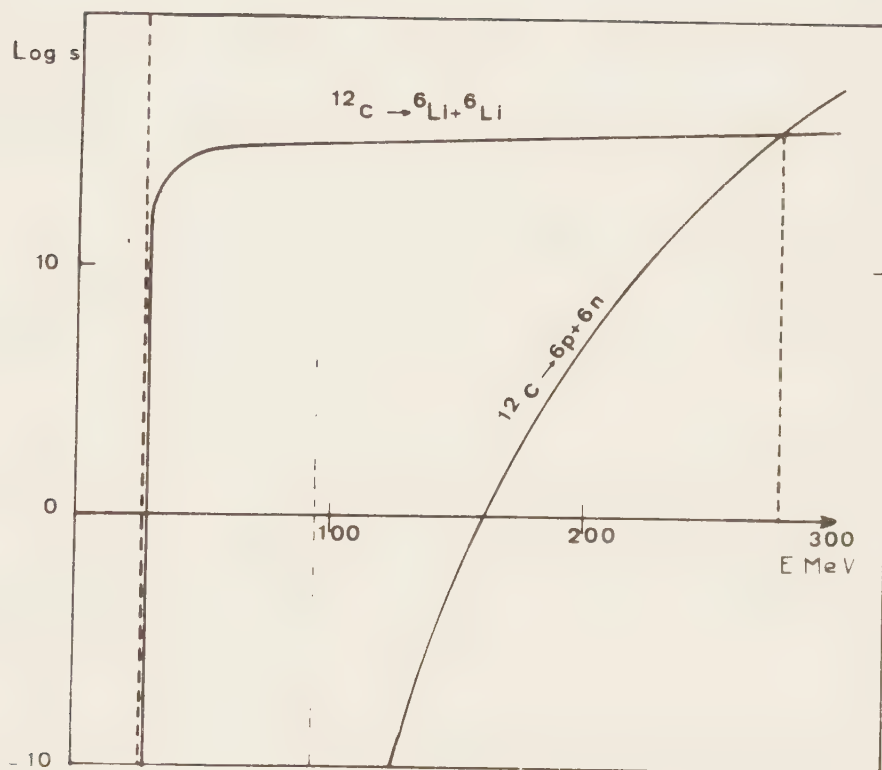


Fig. 30 : Comparaison entre les probabilités de désexcitation de ^{12}C par deux voies différentes. On voit que la rupture complète ne devient le processus le plus probable qu'à 250 MeV, qui est une énergie bien supérieure à celle qui peut être laissée à un noyau de ^{12}C même par un proton très énergétique.

CONCLUSION

La prépondérance de l'émission de fragments stables dans les réactions de fragmentation laissait prévoir l'intérêt d'employer pour leur étude un spectromètre de masse. Il était nécessaire pour cela de transformer assez profondément l'utilisation traditionnelle de cet appareil afin de pouvoir traiter des échantillons très petits (10^8 à 10^{11} atomes). Ce travail montre que nous y sommes parvenus, apportant ainsi les premiers résultats sur la production des nuclides stables ^6Li , ^7Li et ^{23}Na dans les réactions de fragmentation.

En outre, le développement de cette recherche nous a permis, par l'utilisation d'un appareil en ligne, d'étendre, pour la première fois, le domaine d'application du spectromètre de masse aux nuclides des périodes les plus courtes ($T \ll 1$ sec).

Nos résultats, qui apportent d'ores et déjà quelques précisions sur la distribution des produits de fragmentation suivant leur masse et suivant leur stabilité, prouvent sans aucun doute que nos méthodes sont susceptibles d'amener assez rapidement des renseignements plus nombreux et plus détaillés sur ces réactions.

En-dehors de leur intérêt propre, les indications recueillies semblent indiquer que, parmi la variété des produits formés dans ces réactions, se trouvent des nuclides encore inconnus situés loin de la ligne de stabilité et la technique que nous avons mise au point pourrait offrir un moyen sûr d'en caractériser un certain nombre.

Si la perspective d'une explication théorique détaillée de ces phénomènes est encore lointaine et devra attendre l'accumulation d'un nombre suffisant de faits expérimentaux, nous pensons que les méthodes statistiques pourront encore fournir, dans ce domaine, de nombreux résultats utiles (bien que la question de la validité d'emploi, dans ce cas,

du modèle statistique soit encore ouverte et pose, par elle-même, un problème théorique intéressant). En ce sens, notre contribution aura été de montrer l'analogie profonde du modèle statistique de FERMI (employé pour traiter la désexcitation de noyaux légers tels que ^{12}C) et du modèle "d'évaporation" de WEISSKOPF, couramment employé pour des noyaux plus lourds.

Ce travail a été réalisé sous la direction de M. René BERNAS. Qu'il me permette de lui exprimer ici ma reconnaissance pour son aide constante et pour la formation que j'ai pu acquérir au cours de plusieurs années de travail au sein de son groupe.

Mme Françoise YIOU a été associée à ce travail de 1962 à 1964 et je voudrais la remercier ici pour sa précieuse collaboration durant l'ingrate période des débuts. Depuis septembre 1964, le concours efficace de Melle Catherine PHILIPPE et de M. Jacques CHAUMONT a permis de concrétiser, en un temps très bref, les possibilités d'expérience que je viens de décrire. La plupart des résultats expérimentaux ont été acquis avec leur collaboration et je les remercie bien vivement de l'aide qu'ils m'ont ainsi apportée.

J'ai déjà fait mention de la contribution essentielle de MM. ALORENT, AMAREL, BIDERMAN, FERGEAU, SALOME et de Mme LE SCORNET. C'est un plaisir pour moi de les remercier ici à nouveau.

Je remercie également M. REEVES, M. GRADSZTAJN et Mme EPHERRE pour d'agréables et fructueuses discussions.

M. Jean TEILLAC, Directeur du Laboratoire, a bien voulu s'intéresser de façon très directe à ce travail. Je le remercie vivement de l'appui et des encouragements qu'il m'a apportés à cette occasion.

ANNEXE I

Résultats expérimentaux obtenus à 150 MeV

Au début de cette étude, nous avons obtenu quelques résultats à 150 MeV en traitant des cibles de V Nb et Ta par la méthode d'évaporation séparée (chapitre II). Afin de compenser le manque de sensibilité relatif de la méthode, on employait des cibles assez épaisses (2 à 3/10 de mm) et de longues irradiations (3 semaines en faisceau interne en "parasitant" une autre expérience).

Malheureusement, comme nous l'avons expliqué, cette méthode est très ingrate et, devant la difficulté d'obtention des résultats, nous avons dû l'abandonner pour la méthode des filaments. Nous présentons quelques résultats dans le tableau ci-dessous.

cible	V	Nb	Ta	P _t
$R_0 = \frac{\sigma^7_{Li}}{\sigma^6_{Li}}$				$1,2 \pm 0,3$
$R_\infty = \frac{\sigma^7_{Li} + \sigma^7_{Be}}{\sigma^6_{Li}}$	1,3	1,25	2,3	

Ces résultats sont incomplets et, pour en déduire des sections efficaces, il faudrait mesurer R_0 (ce que ^{nous} espérons faire prochainement par d'autres méthodes). Néanmoins, ces résultats étant pour le moment les seuls qui existent dans ce domaine, ils peuvent être utiles pour certaines applications.

C'est ainsi que HINTENBERGER, VOSHAGE et SARKAR⁽⁶⁶⁾ ayant mesuré le rapport isotopique du lithium contenu dans une météorite

ferreuse ont trouvé un résultat voisin de la valeur que nous avons obtenue dans le vanadium. Ils ont pu tirer de cette similitude certaines conclusions concernant la formation du lithium dans ces météorites par irradiation des protons du rayonnement cosmique⁽⁶⁶⁾.

Le fait que la valeur de R_{∞} obtenue soit très inférieure à celle obtenue pour des cibles légères (^{12}C par exemple) est également utile pour orienter le développement des idées sur la nucléosynthèse⁽⁶⁷⁾.

DIFFUSION DANS LES SOLIDES

CONSIDERATIONS GENERALES - RESULTATS EXPERIMENTAUX

I - GENERALITES

a) Définition

On sait que la diffusion est un processus par lequel la matière est transportée d'une partie à une autre d'un système par suite de mouvements aléatoires dus à l'agitation thermique^(°).

b) Lois de FICK

Les lois de la diffusion furent établies par Fick en complète analogie avec la théorie de FOURIER de la transmission de la chaleur.

La loi de Fick s'écrit :

$$j = - D \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1)$$

j = nombre de particules de l'espace considéré, franchissant l'unité de surface pendant l'unité de temps.

$\frac{\partial c}{\partial x}$ = gradient de concentration dans la direction x .

D = coefficient de diffusion, a les dimensions d'une surface par unité de temps. Sa valeur dépend des conditions physiques (nature du milieu, élément diffusant, température) qui seront discutées plus loin.

(°) Note : On peut montrer simplement que, malgré ce caractère aléatoire, la diffusion produira un effet macroscopiquement observable. Soient, en effet, deux milieux de concentration n_1 et n_2 , séparés par une paroi perméable P .

La fraction de particules de 1 franchissant P , pendant l'unité de temps, est évidemment la même que celle des particules de 2 franchissant P pendant le même temps. Si la concentration n_1 est supérieure à n_2 , le nombre de particules franchissant P dans le sens 1 $\rightarrow$ 2 est plus grand qu'en sens inverse. La diffusion produit donc une tendance à l'égalisation des concentrations.

Ecrivant l'équilibre de matière, dans un parallélépipède $dx dy dz$, et appliquant la loi de Fick, on obtient :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) \quad (2)$$

qui est l'équation aux dérivées partielles de la diffusion. La solution d'un problème de diffusion s'obtient en résolvant cette équation avec des conditions aux limites appropriées.

On peut chercher, de cette façon, le courant diffusant hors d'un ruban.

c) Problème du ruban d'épaisseur finie 2ℓ , petite par rapport aux autres dimensions

On est ramené, dans ce cas, à une diffusion unidimensionnelle et on peut écrire :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$

La solution générale d'une telle équation est de la forme :

$$c(x, t) = K + \sum_{n=1}^{\infty} (A_n \cos \lambda_n x + B_n \sin \lambda_n x) \exp \left\{ -\lambda_n^2 Dt / \ell^2 \right\}$$

Les coefficients sont déterminés par les conditions aux limites qui sont les suivantes :

1°) - $c(x, 0) = c_0$: la concentration initiale est homogène en volume.

2°) - La diffusion à la surface est limitée par le taux d'évaporation α .
donc :

$$D \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right)_{x=\ell} = -\alpha c(\ell, t)$$

3°) - On a enfin la condition de symétrie :

$$c(x, t) = c(-x, t)$$

D'où la solution :

$$c(x, t) = c_0 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2L \cos \frac{\beta_n}{\ell} x \exp \left\{ -\beta_n^2 Dt / \ell^2 \right\}}{(L^2 + L + \beta_n^2) \cos \beta_n}$$

avec :

$$\begin{cases} L = \frac{\ell \alpha}{D} \\ \beta_n \operatorname{tg} \beta_n = L \end{cases}$$

Dans les cas que nous aurons à considérer, l'évaporation à la surface est très rapide par rapport à la diffusion ($L \rightarrow \infty$). Alors :

$$c(x, t) = 2 c_0 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\cos \frac{\beta_n}{\ell} x \exp \left\{ -\beta_n^2 Dt / \ell^2 \right\}}{\beta_n \sin \beta_n}$$

avec :

$$\beta_n = (2n + 1) \frac{\pi}{2}$$

Si M_t est la quantité totale de substance ayant diffusé au temps t , on peut écrire :

$$\frac{M_t}{M} = \int_{-\ell}^{+\ell} \frac{c_0 - c(x, t)}{2\ell c_0} dx = 1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2 \exp \left\{ -(2n + 1)^2 \frac{\pi^2}{4} Dt / \ell^2 \right\}}{(2n + 1)^2 \pi^2 / 4}$$

Le courant $I(t)$, sortant par les 2 faces, s'obtiendra en dérivant par rapport au temps l'expression précédente.

Soit :

$$I(t) = \frac{dM_t}{dt} = \frac{2M_{\infty} D}{\ell^2} \sum_{n=0}^{\infty} e^{- (2n + 1)^2 \left(\frac{\pi}{2} \right)^2 \frac{Dt}{\ell^2}}$$

ou, en explicitant les premiers termes :

$$I = \frac{M D}{\ell^2} \left(e^{-\frac{\pi^2 Dt}{4 \ell^2}} + e^{-\frac{9 \pi^2 Dt}{4 \ell^2}} + e^{-\frac{25 \pi^2 Dt}{4 \ell^2}} + \dots \right) \quad (3)$$

qui est l'équation dont nous nous sommes servis au chapitre III.

II - MESURES DES COEFFICIENTS DE DIFFUSION

Les coefficients de diffusion varient généralement avec la température suivant :

$$D = D_0 \exp \left\{ - Q / RT \right\}$$

T est la température absolue

Q une énergie d'activation.

D_0 et Q varient beaucoup avec la nature du milieu et de l'élément diffusant. Les données expérimentales existant dans la littérature à ce sujet sont encore assez rares et il n'existe pas non plus de méthode générale permettant de les calculer à priori.

Comme nous l'avons dit au chapitre III, la méthode des filaments nous a permis de mesurer les coefficients de diffusion de ^6Li et ^7Li , à différentes températures dans Pt et Ta. On utilise pour cela l'équation (3) du paragraphe précédent, en négligeant les modes d'ordre supérieur (ce qui est légitime si $t \gg \tau$).

On obtient alors :

$$i(t) = \frac{MD}{\ell^2} e^{-\pi^2 Dt / 4 \ell^2} \quad (4)$$

et :

$$\text{Log } i = A - \frac{\pi^2}{4} \frac{Dt}{\ell^2}$$



Fig. 31 : Dépendance d'Arrhénus pour la diffusion de Li dans Pt.

Le calcul de la pente de cette droite par la méthode des moindres carrés permet de déterminer le coefficient de diffusion connaissant l'épaisseur du ruban $2l$. Ces calculs sont effectués rapidement à l'aide d'un programme écrit pour la CAB 500.

Donnons l'exemple de la diffusion du ^6Li et ^7Li dans Pt à 1430°C (filament PJc).

Les équations obtenus pour les droites sont :

$$y = 11,86_7 - 0,106 x \quad \left(\sqrt{(\Delta y)^2} = 0,027 \right) \quad \text{pour } ^7\text{Li}$$

$$y = 11,43_4 - 0,108 x \quad \left(\sqrt{(\Delta y)^2} = 0,020 \right) \quad \text{pour } ^6\text{Li}$$

On voit que les pentes des deux droites sont égales (à la précision des mesures), et il semble donc que ^6Li et ^7Li diffusent également vite. Si λ est la pente de la droite, on a :

$$D = \lambda \frac{4l^2}{\pi^2} U$$

U étant l'unité de temps (72 secondes dans notre exemple).

On obtient donc, dans ce cas : $D = 9,4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$

En effectuant ces déterminations pour différentes températures, et en portant $\text{Log } D = f(1/T)$, on constate que la loi d'Arrhénius est correctement suivie (fig. 31). On peut ainsi déterminer D_0 et Q qui sont donnés dans le tableau suivant pour divers cas.

	Li dans Pt	Na dans Pt	Li dans Ta
$D_0 \text{ cm}^2/\text{s}$	$5 \cdot 10^{-3}$	(0,1)	$2 \cdot 10^{-5}$
Q e.v	2,3	3	1,5
$D \text{ cm}^2/\text{s}$ 1500°C	$21 \cdot 10^{-10}$	$3 \cdot 10^{-10}$	$12 \cdot 10^{-10}$

La diffusion du Na dans le Platine est, à température égale, dix fois plus lente environ que celle du Li comme nous l'avons déjà fait remarquer au chapitre III.

Finalement, il nous semble intéressant d'insister sur le fait qu'il ne semble pas y avoir de discrimination isotopique dans nos conditions expérimentales entre la diffusion de ^6Li et ^7Li (ou en tous cas une discrimination $\lesssim 2\%$). Ceci semble en contradiction avec certaines observations de LOVE et Mc CRACKEN⁽⁶⁸⁾, qui ont trouvé une discrimination isotopique de l'ordre de 8 % (racine carrée du rapport des masses).

S'il existait une telle discrimination, les rapports isotopiques que nous mesurons en seraient affectés.

• On a, en effet, d'après (4) :

$$R = \frac{i_7}{i_6} = \frac{M_7}{M_6} \frac{D_7}{D_6} e^{-\frac{\pi^2}{4L^2} (D_7 - D_6) t} \quad (5)$$

D'après l'équation (5), on devrait ainsi observer une évolution systématique des rapports au cours du temps. Au cours de très nombreuses mesures, nous n'avons jamais observé une telle évolution. La figure (32) résume la situation et nous permet d'affirmer que la discrimination observée n'est certainement pas supérieure à 2 %.

III - EQUATION DE DIFFUSION GENERALISEE - CALCUL DE LA CORRECTION DUE A LA DECROISSANCE RADIOACTIVE AU COURS DE LA DIFFUSION

Dans le cas où, en même temps que la diffusion, on a production d'un nuclide par réaction nucléaire et destruction par décroissance radioactive, il est nécessaire d'écrire l'équation de diffusion sous une forme plus générale.

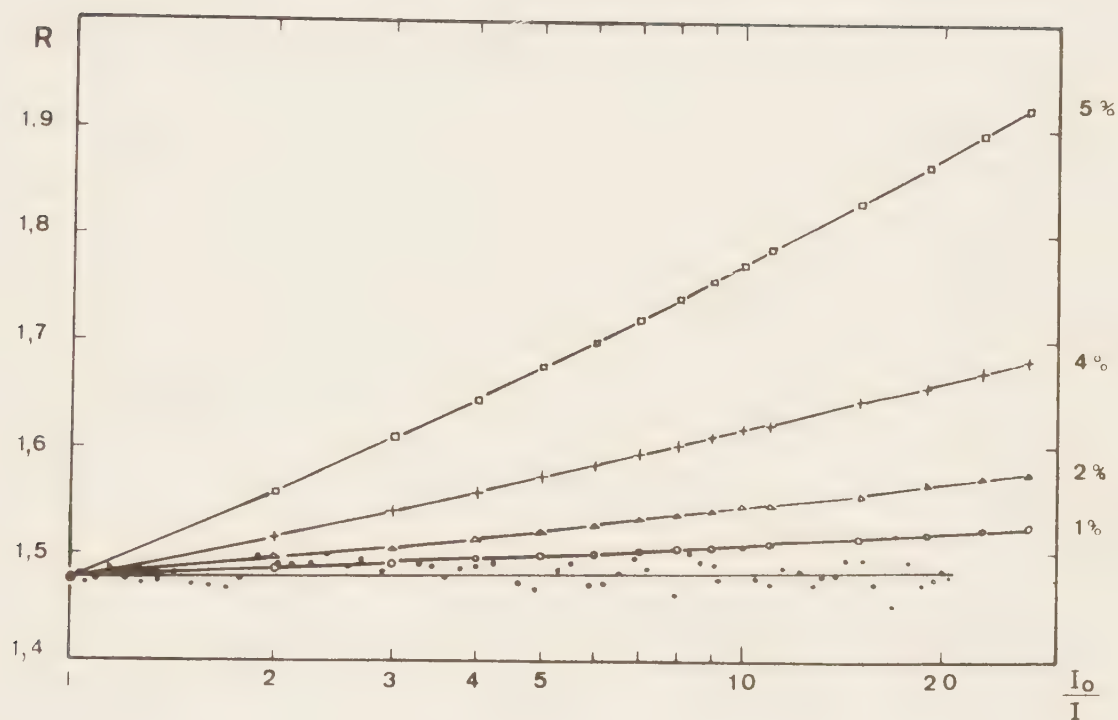


Fig. 32 : Influence d'une discrimination isotopique éventuelle sur la variation du rapport isotopique mesuré au cours de l'épuisement d'un filament.

Soit une cible d'épaisseur $2l$, de densité atomique

$$\rho_0 = \rho \frac{N}{A}$$

bombardée par n protons par seconde. Il se forme un nuclide $[A_1 Z]$ de constante radioactive λ avec une section efficace σ .

Nous raisonnons comme précédemment en admettant que la diffusion est uni-dimensionnelle.

Le bilan de matière dans la tranche $x, x + dx$ résulte de l'équilibre de trois facteurs :

1°) création :

$$\frac{\partial(\Delta n)}{\partial t} = n \sigma \rho_a dx$$

2°) décroissance :

$$\frac{\partial(\Delta n)}{\partial t} = - \lambda \Delta n$$

3°) diffusion à travers les 2 plans x et $x + dx$ suivant la loi de Fick :

$$\frac{\partial(\Delta n)}{\partial t} = - D \frac{\partial c}{\partial x} + D \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right)_{x+dx} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$

Si on exprime tout en fonction de la concentration :

$$\Delta n = c \Delta x$$

$$\boxed{\frac{\partial c}{\partial t} = n \sigma \rho_a - \lambda c + D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}}$$

qui est l'équation cherchée.

Si le temps d'irradiation est long par rapport aux temps caractéristiques de diffusion et de décroissance, on va atteindre un équilibre, les concentrations comme le courant observé ne dépendront plus du temps.

Alors :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = 0$$

et la solution de l'équation sera :

$$c = \frac{n \sigma \rho_a}{\lambda} + c_1 e^{x \sqrt{\lambda/D}} + c_2 e^{-x \sqrt{\lambda/D}}$$

Les conditions aux limites sont $c = 0$ pour $x = \pm \ell$, ce qui donne :

$$c = \frac{n \sigma \rho_a}{\lambda} \left[1 - \frac{\cosh x \sqrt{\lambda/D}}{\cosh \ell \sqrt{\lambda/D}} \right]$$

Le courant sortant par les 2 faces de la cible sera :

$$i = \frac{\partial M}{\partial t} = -D \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right)_{x=\ell} + D \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right)_{x=-\ell} = 2 n \sigma \rho_a \sqrt{\frac{D}{\lambda}} \operatorname{th} (\ell \sqrt{\lambda/D})$$

Pour un nuclide stable, l'équilibre exprime, bien entendu, le fait que ce qui est formé à chaque instant sort. Donc :

$$i_{\text{stable}} = 2 \ell n \sigma \rho_a$$

D'où le facteur de correction pour un nuclide de constante radioactive :

$$\gamma = \frac{i}{i_{\text{stable}}} = \frac{1}{\ell} \sqrt{D/\lambda} \operatorname{th} \ell \sqrt{\lambda/D}$$

Si l'on introduit le temps caractéristique de diffusion :

$$T_D = \frac{4 \ell^2}{\pi^2 D}$$

$$\gamma = \frac{1}{\frac{\pi}{2} \sqrt{\lambda T_D}} \operatorname{th} \frac{\pi}{2} \sqrt{\lambda T_D}$$

soit, en posant :

$$U = \frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{T_d}{T}}$$

$$\gamma = \frac{\text{th } U}{U}$$

formule que nous avons utilisée au chapitre IV.

ANNEXE III

Résultats expérimentaux concernant la production d'isotopes du

Li à partir de ^{11}B

Une cible de bore a été irradiée aux protons de 150 MeV (méthode du spectromètre en ligne, chapitre IV). Le but principal de cette expérience était une tentative de mise en évidence de ^8He . Des sections efficaces de production de ^6Li , ^7Li , ^8Li et ^9Li ont cependant été mesurées à cette occasion.

Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus :

$\sigma^7\text{Li}/\sigma^6\text{Li}$	$\sigma^6\text{Li}/\sigma^8\text{Li}$	$\sigma^6\text{Li}/\sigma^9\text{Li}$	$\sigma^6\text{Li}$ mb	$\sigma^7\text{Li}$ mb	$\sigma^8\text{Li}$ mb	$\sigma^9\text{Li}$ ^(°) mb
$1 \pm 0,1$	15 ± 5	35 ± 20	$10,5 \pm 6$		0,4	0,29

Résultats expérimentaux : $^{11}\text{B} + p_{150\text{ MeV}} \longrightarrow ^6\text{Li} \ ^7\text{Li} \ ^8\text{Li} \ ^9\text{Li}$

La méthode employée était à l'époque le balayage lent et c'est pourquoi les résultats obtenus sont moins précis. Comme nous ne disposions pas de mesures de sections efficaces absolues de ^6Li et ^7Li dans ce cas, nous avons normalisé nos valeurs en utilisant la section efficace obtenue pour ^9Li par GAUVIN et al.

(°) Cette valeur a été obtenue par GAUVIN et al. (communication personnelle)

ANNEXE IV

Utilisation comparée d'un séparateur d'isotopes et d'un spectromètre de masse à émission thermoionique pour la séparation en continu de nuclides de courtes périodes

Jusqu'ici (et pour des raisons pratiques évidentes), les études de spectroscopie nucléaire se sont limitées à des nuclides dont la période est $\gtrsim 10$ minutes. On a pu estimer que les nuclides ainsi étudiés ne représentent que le tiers environ de ceux dont l'existence est certaine ou probable. Ceci explique donc la préoccupation des spectroscopistes et les projets qui se font jour depuis quelques années consistant à associer directement un séparateur d'isotopes à un accélérateur de particules (ou un réacteur), afin d'obtenir en régime continu des intensités suffisantes de nuclides à vie courte^(°).

Nous avons montré dans le texte qu'un tel résultat peut, en fait, être obtenu à l'aide d'un spectromètre de masse à émission thermoionique. Afin de comparer l'utilisation de ces deux dispositifs pour cette application particulière, rappelons tout d'abord en quoi ils sont différents.

Dans les deux cas, il s'agit de séparer des ions suivant leur masse par l'action combinée de champs électrique et magnétique. Cependant, le séparateur était destiné, à l'origine, à la séparation de quantités pondérables d'isotopes stables. Afin d'obtenir les intensités ioniques nécessaires (10^{-6} à 10^{-7} A comparés aux 10^{-19} à 10^{-14} A suffisants dans un spectromètre de masse), il fut nécessaire de faire appel à un nouveau dispositif de production des ions : la source à plasma. Ce type de source se révéla finalement un moyen d'ionisation extrêmement souple (presque tous les éléments sont ainsi ionisés avec un rendement voisin de 1 %), si bien qu'on en arriva à l'employer non seulement pour

(°) Par exemple, le projet ISOLDE en cours de réalisation au CERN⁽⁶⁹⁾

obtenir des quantités pondérables d'isotopes stables mais également pour séparer les traces d'isotopes radioactifs formés au cours des réactions nucléaires. L'emploi de cette source impose cependant les servitudes suivantes :

- une pression de 10^{-3} mm Hg doit être maintenue dans la source pour entretenir la décharge (éventuellement par un gaz d'apport lorsque les quantités à séparer sont très faibles), alors qu'un vide de 10^{-5} doit régner dans le reste de l'installation. Ceci implique la nécessité d'un pompage important donc d'une chambre à vide de grandes dimensions.

- pour obtenir un bon rendement, il faut extraire de cette source un courant important (même si le courant effectivement utilisé est très faible). Il est nécessaire, de plus, d'extraire ce courant sous très haute tension : 30 à 70 kV (au lieu de 3 kV dans un spectromètre de masse). Ceci, d'une part à cause de la charge d'espace, mais aussi à cause de phénomènes parasites (échange de charge, diffusion) qui élargiraient le faisceau d'ions dans le vide imparfait situé au voisinage de la source d'ions. A cette très haute tension d'accélération correspond évidemment un champ magnétique plus élevé, donc un aimant de plus grande taille.

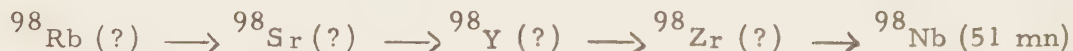
Ces considérations suffisent à expliquer pourquoi un séparateur d'isotopes à forte intensité est une installation plus lourde, plus complexe et plus coûteuse qu'un spectromètre de masse.

Rappelons, cependant, que, dans la plupart des applications de laboratoire (et, en particulier, pour la production en continu qui nous intéresse), on ne sépare pas des quantités pondérables mais bien des traces infimes d'isotopes radioactifs, obtenus, par exemple, au cours de réactions de spallation. La forte intensité n'est donc justifiée ici que par la nécessité d'employer une source à plasma pour avoir un bon rendement. On peut comparer la situation à celle très fréquente en radiochimie, où l'addition d'un "entraîneur" stable permet de mener à bien des opérations impossibles à effectuer sur un échantillon trop restreint.

Il s'agit ici principalement de l'ionisation mais aussi, éventuellement, de l'extraction des produits de réaction d'une cible fondue et de leur entraînement vers l'enceinte de source par un courant gazeux.

Dans le cas du spectromètre de masse, nous avons vu que l'emploi de l'émission thermoionique permet, dans le cas des alcalins, d'obtenir un bon rendement, quelle que soit la valeur du courant ionique. De même, l'emploi du graphite, comme matériau diffuseur, évite les complications dues à l'emploi d'une cible fondue, ainsi que les problèmes de transport de la cible vers la source d'ions (l'ionisation ayant lieu à la surface même du graphite). Dans ces conditions, il suffit d'extraire et d'accélérer un courant d'ions inférieur à 10^{-14} A, ce qui simplifie beaucoup la construction et le coût de l'appareil.

Certes, cette disposition ne s'applique pratiquement qu'aux éléments alcalins. Nous avons déjà fait remarquer que cette sélectivité est en même temps un avantage puisqu'elle permet d'éviter la séparation chimique préalable, indispensable avec les procédés d'ionisation universels. En outre, l'utilisation en spectroscopie pourra, par le jeu des filiations, être étendue à des isobares voisins. Par exemple, la production de ^{98}Rb permet d'obtenir les nuclides de la chaîne :



En résumé, cette méthode, bien que moins ambitieuse que celle du séparateur d'isotopes en ligne, permettra probablement d'avoir, pour un coût beaucoup plus modique, de premiers résultats intéressants dans ce nouveau domaine de la spectroscopie nucléaire.

REFERENCES

- 1 - MILLER J. M. , Communication au Congrès de l'American Chemical Society, Détroit 1965
- 2 - WOLFGANG R. , BAKER E. W. , CARETTO A. A. , CUMMING J. B. ,
FRIEDLANDER G. , and HUDIS J. , Phys. Rev. 103, (1956), 394
- 3 - PERFILOV N. A. , LOZHKIN et SHAMOV V. P. , Usp Fiz Nauk 60 3
(1960) (Soviet Physics Uspekhi 3, (1960), 1)
- 4 - LEFORT M. , Ann. Phys. 9 (1964) 249
- 5 - KATCOFF S. , Phys. Rev. 114 (1959) 905
- 6 - STEIN R. , Thèse Strasbourg 1965
- 7 - Voir fig. 8 de la réf. 59
- 8 - GORICHEV P. A. , LOZHKIN O. V. , PERFILOV N. A. et YAKOVLEV,
Phys. Rev. 126 (1962) 2196
- 9 - CUMMING J. B. , Ann. Rev. of Nucl. Science 13 (1963) 261
- 10 - SUGARMAN N. , CAMPOS M. and WIELGOZ K. , Phys. Rev. 101
(1956) 388
- 11 - POSKANZER A. M. , CUMMING J. B. , WOLFGANG R. , Phys. Rev.
129 (1963) 374
- 12 - METROPOLIS N. , BIVINS R. , STORM M. TURKEVITCH A. ,
MILLER J. M. and FRIEDLANDER G. , Phys. Rev. 110 (1958) 185
- 13 - CRESPO V. P. , ALEXANDER J. M. and HYDE E. K. , Phys. Rev.
131 (1963) 1765

- 14 - KORTELING R. G. and HYDE E. K. , Phys. Rev. 136 B (1964) 425
- 15 - CUMMING J. B. , CROSS R. J. , HUDIS J. and POSKANZER A. M. ,
Phys. Rev. 134 B (1964) 167
- 16 - LEFORT Marc, "La Chimie Nucléaire" Paris 1966, p. 413
- 17 - STEINBERG E. P. (communication personnelle)
- 18 - PERLMAN M. (communication personnelle)
- 19 - LEFORT M. et TARRAGO X. , Projet d'expérience CERN (commu-
nication personnelle)
- 20 - COMBE J. , HOFFMAN L. , ZIELINSKI P. proposition d'expérience
au CERN 1965
- 21 - SCHAEFFER O. et HUDIS J. (communication personnelle)
- 22 - REYNOLDS J. H. , Rev. Sci. Instr. 27 (1956) 928
- 23 - HINTENBERGER H. , Ann. Rev. Nucl. Sci. 12 (1962) 435
- 24 - NGUYEN LONG DEN (communication personnelle et Thèse Orsay
1966)
- 25 - YIOU F. (communication personnelle)
- 26 - GRADSZTAJN E. , Thèse Paris 1965
- 27 - WHITE F. A. and COLLINS T. L. , Applied Spectroscopy 8 (1954) 17
- 28 - FRIEDLANDER G. , FRIEDMAN L. , GORDON B. M. and YAFFE L.
Phys. Rev. 129 (1963) 1809
- 29 - Mc HUGH J. H. , Thèse 1963 - U. C. R. L. 10.673

- 30 - BERNAS R., EPHERRE M., GRADSZTAJN E., KLAPISCH R.,
YIOU F., Physics Letters 15 (1965) 147
- 31 - ROWLAND F.S. and WOLFGANG R., Phys. Rev. 110 (1958) 175
- 32 - BARTON Jr G.W., GIBSON L.E., and TOLMAN L.F., Analytical
Chemistry 32 (1960) 1599
- 33 - GAUVIN (communication personnelle)
- 34 - ALBURGER D.E., Phys. Rev. 132 (1963) 328
- 35 - BAZ A.J., GOLDANSKI V.I., ZELDOVICH Ya. B., Soviet Physics
Uspekhi 3 (1961) 729
- 36 - BAZ A.J., GOLDANSKI V.I., ZELDOVICH Ya. B., Usp Fiz Nauk
85 (1965) 445 et Soviet Physics Uspekhi 8 (1965) 177
- 37 - GOLDANSKI V.I., Soviet Physics JETP 11 (1960) 1179
- 38 - LOZHKIN and RIMSKY-KORSAKOV A.A., JETP 40 (1961) 1519
et Soviet Physics JETP 13 (1961) 1064
- 39 - NEFKENS B.M.K., Phys. Rev. Letters 10 (1963) 243
- 40 - POSKANZER A.M., REEDER P.L. and DOSTROVSKY I., Phys.
Rev. 138 (1965) B 18
- 41 - GRADSZTAJN E., YIOU F., KLAPISCH R., BERNAS R., Phys.
Rev. Letters 14 (1965) 436
- 42 - SERBER R., Phys. Rev. 72 (1947) 1114
- 43 - MYERS W.D. et SWIATECKI N.J., U.C.R.L. 11 980
- 44 - GRADSZTAJN E., Phys. Rev. Letters 13 (1964) 240

- 45 - FERMI E., Prog. Theor. Phys. 5 (1950) 570
- 46 - LEPORE J. V. and STUART R. N., Phys. Rev. 94 (1954) 1724
- 47 - ROSENTHAL I. L., Soviet Physics JETP 1 (1955) 166
- 48 - HUDIS J. and MILLER J. M., Phys. Rev. 112 (1958) 1322
- 49 - HUDIS J. (communication personnelle)
- 50 - HUDIS J. et SCHAEFFER O., non publié, communication particulière
- 51 - DOSTROVSKY I., DAVIS R. Jr, POSKANZER A. M. and REEDER P. L.
Phys. Rev. 139 (1965) B 1513
- 52 - KATCOFF S., BAKER E. W. and PORILE N. T., BNL 9386
- 53 - Communication à la Conférence de Leysin (1963) et communication
personnelle
- 54 - CARETTO Jr A. A., HUDIS J. and FRIEDLANDER G., Phys. Rev.
110 (1958) 1130
- 55 - FRIEDLANDER G., communication à la Conférence de Salzbourg
1965, édité par IAEA p. 263, vol. II
- 56 - SHARP R., non publié, cité dans (51)
- 57 - CUMMING J. B., HUDIS J., POSKANZER A. M., KAUFMAN S.,
Phys. Rev. 128 (1962) 2392
- 58 - SIMONOF G. N. et VIDAL C., Physics Letters 20 (1966) 30
- 59 - LOZHKIN O. V., Conférence CERN 1963, CERN 63-28, p. 105

- 60 - DENISOV, KOSAREVA and CERENKOV, Proceedings of the
Taschkent Conference on the peaceful uses of atomic energy,
vol. 1, pp. 139-152
 - 61 - DOSTROVSKI I, FRAENKEL Z. and RABINOWITZ P., Phys. Rev.
118 (1960) 791
 - 62 - PORILE N. T., Phys. Rev. 141 (1966) 1082
 - 63 - ERICSON T., Advances in Physics 9 (1960) 425
 - 64 - BERNAS R., KLAPISCH R., CHAUMONT J. et PHILIPPE C.,
Proposition d'expérience au CERN 1965
 - 65 - AMAREL (communication particulière)
 - 66 - HINTENBERGER H., VOSHAGE et SARKAR, Berichte aus den
Meteoritenforschung n° 72 Max - Planck Institute für Chemie
Mainz 1965
 - 67 - BERNAS R., GRADSZTAJN E., REEVES H. et SCHATZMAN E.,
On the nucleosynthesis of Li Be B (à paraître)
 - 68 - LOVE H. M. et Mc CRACKEN G. M., Can Journ of Physics 41 (1963) 83
 - 69 - RUDSTAM G. et ANDERSON G., rapport CERN et communication
particulière
 - 70 - POSKANZER A. M., ESTERLUND R. A. and Mc PHERSON R.,
Phys. Rev. Letters 15 (1965) 1030
 - 71 - CERNY J., COSPER S. W., BUTLER G. W., PEHL R. H.,
GOULDING F. S., LANDIS D. A. and DETRAZ C., Phys. Rev.
Letters 16 (1966) 469
-

